

**UNIVERSIDAD COMPLUTENSE DE MADRID**

**FACULTAD DE CIENCIAS QUÍMICAS**

**Departamento de Ciencias de los Materiales  
e Ingeniería Metalúrgica**



**TESIS DOCTORAL**

**Investigación de una metodología no destructiva de  
caracterización de bultos de residuos radiactivos heterogéneos  
mediante espectrometría Y utilizando un código matemático  
basado en Monte Carlo**

MEMORIA PARA OPTAR AL GRADO DE DOCTOR

PRESENTADA POR

**María Jesús Marijuán Martín**

Directores

**Javier Quiñones Díez  
José Antonio Suárez Navarro**

**Madrid, 2017**



Investigación de una metodología no destructiva de caracterización de bultos de residuos radiactivos heterogéneos mediante espectrometría  $\gamma$  utilizando un código matemático basado en Monte Carlo

TESIS DOCTORAL

María Jesús Marijuán Martín

Directores:

Javier Quiñones Díez  
José Antonio Suárez Navarro

Madrid, julio de 2015



MINISTERIO  
DE ECONOMÍA  
Y COMPETITIVIDAD

**Ciemat**

Centro de Investigaciones  
Energéticas, Medioambientales  
y Tecnológicas





Investigación de una metodología no destructiva de caracterización de bultos de residuos radiactivos heterogéneos mediante espectrometría  $\gamma$  utilizando un código matemático basado en Monte Carlo

TESIS DOCTORAL

María Jesús Marijuán Martín

Madrid, julio de 2015



MINISTERIO  
DE ECONOMÍA  
Y COMPETITIVIDAD

**Ciemat**

Centro de Investigaciones  
Energéticas, Medioambientales  
y Tecnológicas





JAVIER QUIÑONES DÍEZ, Subdirector General de Seguridad y Mejora de las Instalaciones del Centro de Investigaciones Medioambientales y Tecnológicas (CIEMAT) y hasta el 2013 Profesor Asociado del Dpto. de Ciencia de los Materiales e Ingeniería Metalúrgica de la Facultad de Ciencias Químicas de la Universidad Complutense de Madrid

C E R T I F I C A:

Que el presente trabajo de investigación titulado "Investigación de una metodología no destructiva de caracterización de bultos de residuos radiactivos heterogéneos mediante espectrometría  $\gamma$  utilizando un código matemático basado en Monte Carlo", constituye la memoria que presenta M<sup>a</sup> Jesús Marijuán Martín, para optar al Grado de Doctor en Ciencias Químicas y que ha sido realizada en la Unidad PIMIC del Centro de Investigaciones Energéticas Medioambientales y Tecnológicas (CIEMAT).

Para que así conste lo firmo en Madrid a veinte de julio de dos mil quince

Fdo. Javier Quiñones Díez



JOSÉ ANTONIO SUÁREZ NAVARRO, responsable del Laboratorio de Espectrometría Gamma de la Unidad de Radiactividad Ambiental y Vigilancia Radiológica del Departamento de Medioambiente del Centro de Investigaciones Medioambientales y Tecnológicas (CIEMAT)

C E R T I F I C A:

Que el presente trabajo de investigación titulado "Investigación de una metodología no destructiva de caracterización de bultos de residuos radiactivos heterogéneos mediante espectrometría  $\gamma$  utilizando un código matemático basado en Monte Carlo", constituye la memoria que presenta M<sup>a</sup> Jesús Marijuán Martín, para optar al Grado de Doctor en Ciencias Químicas y que ha sido realizada en la Unidad PIMIC del Centro de Investigaciones Energéticas Medioambientales y Tecnológicas (CIEMAT).

Para que así conste lo firmo en Madrid a veinte de julio de dos mil quince

Fdo. José Antonio Suárez Navarro



*"Mi sonrisa es mi espada y mi alegría mi escudo"*

*Martín Lutero*



## Agradecimientos

Me gustaría expresar mi agradecimiento a todas las personas que me han ayudado de alguna manera en la realización de este trabajo.

En primer lugar quiero agradecer a mis Directores de tesis, Dr. D. Javier Quiñones Díez y Dr. D. José Antonio Suárez Navarro, por brindarme esta oportunidad, además de por su apoyo, dedicación y rigor científico, que han permitido la realización del trabajo incluido en esta memoria.

A la Unidad de Gestión de Residuos del CIEMAT en la que inicié este recorrido y sin la cual este trabajo no habría sido posible, especialmente a Miguel Ángel Esteban por su colaboración, dedicación y ayuda.

A los laboratorios del CIEMAT: Laboratorio de Caracterización de Residuos Radiactivos, Laboratorio de Medidas de Protección Radiológica y Laboratorio de Metrología de Radiaciones Ionizantes, cuya colaboración ha sido fundamental para llevar a término este trabajo.

A mis compañeros de UPIMIC y Lainsa por su participación y ayuda, así como a los compañeros de mantenimiento y talleres por su colaboración en tareas experimentales facilitándome medios y materiales.

A los compañeros del CIEMAT que me han animado y apoyado incondicionalmente, muy especialmente a Eduardo, por sus sabios y numerosos consejos, por estar ahí y por brindarme además de su ayuda su amistad.

A mis amigos por vuestro interés, ánimo y paciencia, por contar con vuestra amistad y comprenderme en esta difícil etapa con muchos cambios de estado de ánimo.

A mi familia, aunque en la distancia, sé que puedo contar con ellos.

Y en general a todos los compañeros que me han ayudado con su presencia y ánimo a llegar a este momento.





*A Enrique*



# Índice

0	Summary.....	i
0.1	Introduction.....	i
0.2	Objectives .....	ii
0.3	Results.....	ii
0.4	Conclusions .....	v
1	Objetivos .....	1
2	Introducción.....	5
2.1	Residuos radiactivos. Gestión y marco legal.....	5
2.2	Clasificación de los residuos radiactivos.....	6
2.3	Detectores de radiación.....	7
2.3.1	Detectores de ionización gaseosa .....	8
2.3.1.1	Contadores proporcionales.....	9
2.3.2	Detectores de semiconductor .....	10
2.3.2.1	Detector de Ge ultrapuro .....	11
2.4	Proyecto PIMIC .....	14
2.4.1	Tipos de bidones generados en el Proyecto PIMIC.....	17
2.4.1.1	Bultos heterogéneos con residuos compactables.....	17
2.4.1.2	Bultos heterogéneos con residuos no compactables.....	17
2.4.1.3	Bultos heterogéneos con residuos sólidos pulverulentos.....	18
2.4.1.4	Bultos homogéneos con residuos líquidos inmovilizados.....	18
2.5	Caracterización isotópica de materiales residuales .....	18
2.5.1	Caracterización no destructiva mediante espectrometría $\gamma$ .....	20
2.5.2	Propuesta de nueva metodología .....	21
3	Procedimiento experimental .....	27
3.1	Materiales y patrones.....	28
3.1.1	Patrones.....	28
3.1.2	Bidones.....	29
3.1.3	Material de laboratorio .....	29
3.1.4	Muestras .....	30
3.2	Equipos y detectores de radiación.....	30
3.2.1	Contador proporcional MPC-9604.....	30
3.2.2	Detector portátil de Ge.....	32
3.2.2.1	Genie-2000.....	33
3.2.2.2	<i>Geometry Composer</i> -ISOCS .....	37
3.2.2.3	Plataforma de giro .....	38
3.2.3	Detector de Ge para espectrometría gamma segmentada (SGS).....	38
3.3	Ensayos .....	39
3.3.1	Puesta a punto del contador proporcional MPC-9604 de Protean .....	39
3.3.1.1	Determinación de las curvas características.....	40
3.3.1.2	Determinación de eficiencias y fondos .....	40
3.3.1.3	Determinación del <i>spillover</i> .....	41
3.3.1.4	Determinación de las figuras de mérito.....	42
3.3.1.5	Determinación del factor de autoabsorción.....	42
3.3.2	Determinación de los índices de actividad $\alpha$ y $\beta$ total.....	43
3.3.3	Caracterización de bultos homogéneos mediante espectrometría $\gamma$ con ISOCS.....	46

3.3.4	Caracterización de bultos heterogéneos mediante espectrometría $\gamma$ con ISOCS.....	47
3.3.5	Método propuesto.....	47
<b>4</b>	<b>Resultados y discusión.....</b>	<b>49</b>
4.1	Puesta a punto del contador proporcional MPC-9604 de Protean.....	49
4.1.1	Determinación de las curvas características.....	49
4.1.2	Determinación de eficiencias y fondos.....	51
4.1.3	Determinación del spillover.....	53
4.1.4	Determinación de las figuras de mérito.....	54
4.1.5	Determinación del factor de autoabsorción.....	56
4.2	Determinación de los índices de actividad $\alpha$ y $\beta$ total.....	58
4.2.1	Validación del contador proporcional de flujo continuo MPC-9604.....	60
4.2.1.1	Eficiencia.....	60
4.2.1.2	Índices de actividad.....	60
4.2.2	Conclusiones parciales.....	62
4.3	Caracterización de bultos homogéneos.....	63
4.3.1	Influencia de la distancia bulto-detector en bultos RBBA y desclasificables.....	64
4.3.2	Estudio de colimadores y absorbente en bultos RBMA.....	66
4.3.2.1	Descripción del bulto.....	66
4.3.2.2	Parámetros de medida.....	67
4.3.2.3	Estudio del absorbente.....	74
4.3.2.4	Establecimiento de las condiciones idóneas de medida.....	74
4.3.3	Estudio de la composición de la matriz.....	75
4.3.3.1	Compuestos en estado puro.....	75
4.3.3.2	Cementos Portland.....	77
4.3.4	Influencia de la densidad de la matriz.....	78
4.3.5	Comparación de la eficiencia matemática y experimental.....	80
4.3.6	Conclusiones parciales.....	82
4.4	Caracterización de bultos heterogéneos.....	83
4.4.1	Determinación de la actividad en estático.....	86
4.4.2	Determinación de la actividad en dinámico con ponderación.....	88
4.4.3	Comparación de eficiencia matemática y experimental.....	94
4.4.4	Conclusiones parciales.....	96
4.5	Metodología para la caracterización de bultos.....	97
4.5.1	Caracterización de bidones.....	99
4.5.1.1	Densidades $< 1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ .....	99
4.5.1.2	Densidades $> 1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ .....	100
4.5.2	Validación bultos homogéneos.....	102
4.5.2.1	Interna.....	102
4.5.2.2	Externa.....	103
4.5.3	Validación de bultos heterogéneos.....	104
4.5.3.1	Interna.....	105
4.5.3.2	Externa.....	105
4.5.4	Conclusiones parciales.....	107
4.5.4.1	Conclusiones de la caracterización de bultos.....	107
4.5.4.2	Conclusiones de la validación de bultos homogéneos.....	108
4.5.4.3	Conclusiones de la validación de bultos heterogéneos.....	108
4.6	Aplicación a materiales residuales PIMIC.....	109
4.6.1	Caracterización y discusión.....	112
4.6.1.1	Índice de actividad $\beta$ total.....	113
4.6.1.2	$^{137}\text{Cs}$ por espectrometría $\gamma$ de laboratorio.....	114
4.6.1.3	$^{90}\text{Sr}$ mediante centelleo líquido.....	115
4.6.1.4	$^{90}\text{Sr}$ obtenido mediante el índice de actividad $\beta$ total.....	116
4.6.2	Análisis estadístico de los resultados de las muestras experimentales.....	117
4.6.3	Validación.....	119
4.6.4	Conclusiones parciales.....	123
4.7	Impacto económico en la gestión de materiales residuales.....	124

5 Conclusiones .....	127
6 Líneas futuras de investigación .....	131
7 Referencias .....	133
8 Relación de tablas y figuras.....	143
8.1 Índice de tablas .....	143
8.2 Índice de figuras .....	145
9 Listado de acrónimos.....	149



## 0 Summary

---

### 0.1 Introduction

Since 2000, CIEMAT (Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas) is carrying out the PIMIC Project (Integral Plan for the Improvement of CIEMAT Facilities) for the decommissioning & dismantling of old nuclear and radioactive facilities and the potentially radiologically impacted areas and buildings.

PIMIC activities involve the generation of waste materials with various physical, chemical and radiological properties, which must be characterized in order to be properly managed and comply with current regulations.

Radiological characterization of these waste materials may lead to their classification as radioactive waste, in which case the "Plan de Gestión de Residuos Radiactivos del CIEMAT"[1] and their removal by ENRESA, the public company that manages the radioactive wastes generated in SPAIN applies [2, 3]. However, a large fraction of these waste materials with low radioactive contents are likely to be managed as conventional waste without further radiological control, through the so called Decommissioning Process.

The optimization in the production of waste materials as well as their minimization are key factors for the process due to their significant economic, social and environmental impacts.

This work presents a methodology for characterization of radioactive waste materials in a specific area from CIEMAT (Lentil) in the frame of the PIMIC-Rehabilitation Project. The area is characterized by a residual contamination with the artificial radionuclides  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$ . The characterization of these waste materials is performed by applying a new protocol that combines the following experimental techniques (Figure a):

- High resolution  $\gamma$ -ray spectrometry with high purity Ge detectors (HPGe), combined with the calibration efficiency system provided by the ISOCS code (In Situ Object Counting System) from Canberra [4], which allows "in situ" characterization of waste materials and the determination of  $\beta/\gamma$  emitters effectively, safely and economically.
- $\alpha$  and  $\beta$  Counting System using a low background gas-flow proportional counter, model MPC-9604 from Protean. This technique allows, in a simple, accurate and rapid method, the determination of gross  $\alpha$  and  $\beta$  activities. The gross  $\beta$  activity allows the determination of pure  $\beta$  emitters as well as  $\beta/\gamma$  emitters, thus allowing the determination of some radionuclides such as  $^{90}\text{Sr}$ , which are not detected by  $\gamma$ -ray spectrometry.





Figure a. Characterization of waste materials from Lot J (CIEMAT) by nondestructive assay with  $\gamma$ -ray spectrometry with the ISOCS code and the proportional counter model MPC-9604.

## 0.2 Objectives

The main objectives of this research work were as follows:

- Determination of the optimal operating conditions of the low background  $\alpha/\beta$  proportional counter for application to the characterization of waste materials.
- Validation of the proportional counter measurement protocol for the characterization of waste materials in order to be used in the decommissioning process.
- Study and development of suitable methods for the characterization of packages containing waste materials by nondestructive assay with  $\gamma$ -ray spectrometry in order to be used in the decommissioning process.
- Validation of the methodology proposed by the characterization of real radioactive waste packages by  $\gamma$ -ray spectrometry.
- Development and testing of a protocol for characterization of waste materials generated in the decommissioning & dismantling of a specific area from CIEMAT (Lot J) by combining both techniques.

## 0.3 Results

The main results obtained in this study are presented below and compared to the objectives:

1. Determination of the optimal operating conditions of the low background  $\alpha/\beta$  proportional counter for application to the characterization of waste materials.
  - We have determined the optimal working conditions of the gas-flow proportional counter MPC-9604 model from Protean.
  - The determination of the gross  $\beta$  activity requires a significant correction by spillover in the  $\beta$  windows, while for the  $\alpha$  windows such correction is minimal.

- The analysis of the characteristic curves of the  $\beta$  windows has allowed to set the optimal working voltage of the detector as 1485 V.

## 2. Characterization of homogeneous drums with ISOCS $\gamma$ spectrometry.

The three factors considered as the most influential in this study were the matrix composition, its density, and the drum-to-detector distance. Such are the causes of a large number of systematic errors introduced in determining the activity of waste drums.

- There is a dependence of the detection efficiency on the matrix composition, which is more pronounced at low energies, where the interaction of  $\gamma$  radiation with matter  $\gamma$  is dominated by the photoelectric effect.
- The efficiencies calculated by the ISOCS code for various types of Portland cement are basically independent of the composition.
- The self-absorption of  $\gamma$  radiation in the material under analysis is strongly dependent on the density of the material. This effect is more prominent at low and medium energies.
- The distance between the container of the materials to be tested and the detector has a large influence on the efficiency of detection. For an ideal radiation source, such dependence is expressed as the inverse square of the distance between them. In the configuration studied in this work that relationship is not strictly true, but an increase in drum-to-detector distance results in a rapid decrease in efficiency. The optimum working distance for residual materials was determined at 50 cm distance. Such distance allows the integral characterization of the drum in a single measurement while keeping measurement times in reasonable values. For LILW drums, the measurement conditions are affected.

## 3. Characterization of heterogeneous drums with ISOCS $\gamma$ spectrometry.

Static and dynamic tests were carried out at various source-to-detector distances, for different matrices and placing the source inside the drum in different spatial arrangements.

- The activity contents of a drum with a heterogeneous activity distribution can be accurately determined using the methodology of the static drum measurement, that is, from the activities obtained at different static positions of the drum relative to the detector.
- The results obtained using the methodology of the drum with uniform movement of rotation, show good agreement with the reference values, in particular for the lower density matrices. Furthermore, measurement under

rotation leads to a significant optimization in the measurement times, in the order of 75% or more.

- The determination of the activity of a source in a particular radial position contained in a heterogeneous drum, can be performed using the weighted average efficiency (EPP: eficiencia promedio ponderada) combined with an uniform movement of rotation. This methodology, successfully reproduces the activity of heterogeneous drums assuming that the source position is known.
- In case of drums from residual materials with unknown heterogeneous activity distribution and densities  $> 1 \text{ g.cm}^{-3}$  the methodology called EMPY (eficiencia media ponderada intermedia) is followed. EMPY is an efficiency value obtained by a weighted mean of efficiencies corresponding to the inner cylindrical volume of the drum where it is assumed that the activity is contained

The methodology established in this work for the characterization of drums containing radioactive waste materials by  $\gamma$  spectrometry is presented in Figure b.

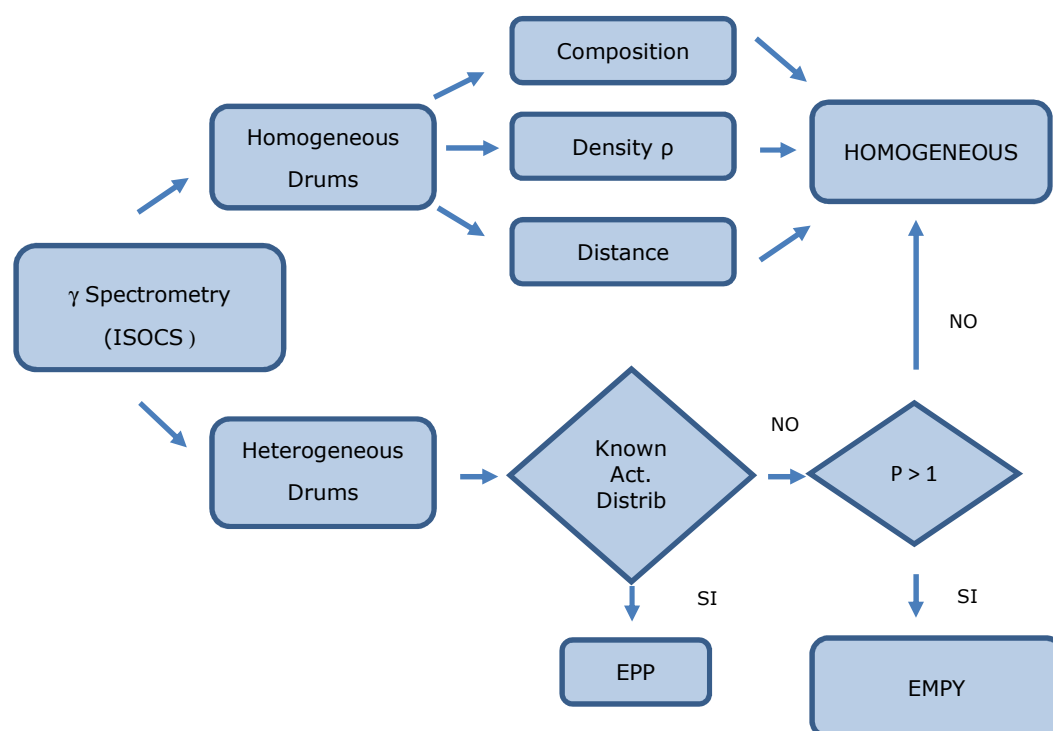


Figure b. Methodology established in this work for the characterization of packages containing waste materials. Determination of  $\gamma$  emitters by in situ  $\gamma$  spectrometry with ISOCS.

A protocol has been developed for the characterization of waste materials generated in the rehabilitation of Lot J at CIEMAT (Figure c).

Finally an economic study has been carried out to evaluated savings in the decommissioning process.

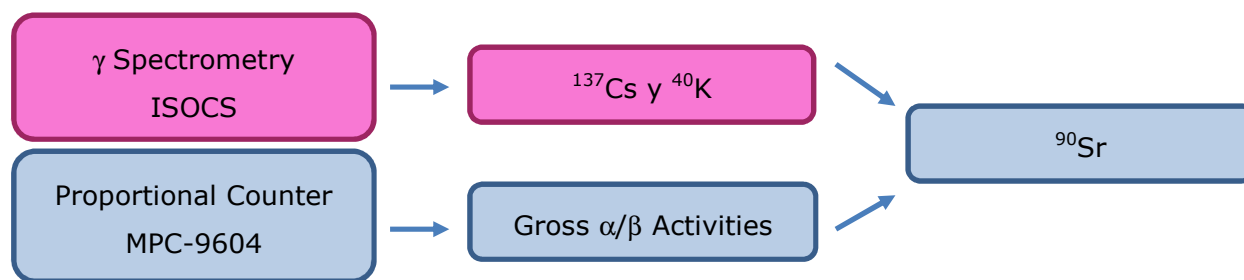


Figure c. Outline of the protocol developed in this work for the characterization of waste materials generated in the rehabilitation of Lot J. Determination of the contents of  $^{90}\text{Sr}$  y  $^{137}\text{Cs}$ .

The costs of radioactive waste management (RW) and of construction and demolition (CDW) waste are given in Table A for comparison.

Table A. Costs of radioactive waste management (RW) as compared to construction and demolition (CDW) costs.

Waste	Price (€) Bag (25 l)	Price (€) Drum (220 l)	Price (€) CMB (1500 l)
RW	250	2000	15000
CDW	0,250	2	15

The application of the protocol for the characterization of the residual waste materials generated in the rehabilitation of Lot J at CIEMAT would allow to remove from regulatory control the amount of 2033 tons of decommissioning materials (Figure d). The proposed protocol has significant advantages like an economic saving of 20,33 M €.

## 0.4 Conclusions

The protocol developed in this work allows the characterization of the waste materials generated during the rehabilitation process of Lot J at CIEMAT. It represents a decision making protocol regarding the management of such materials.

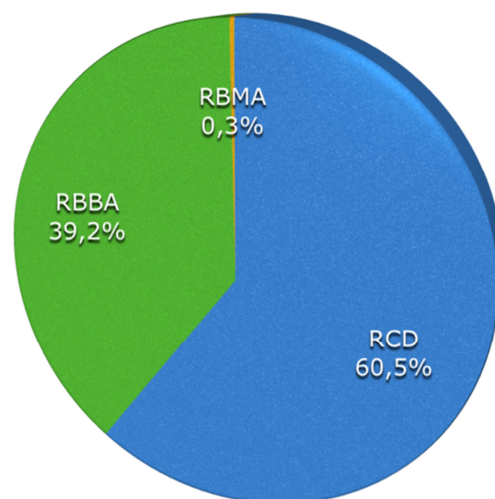


Figure d. Distribution of waste materials generated during the rehabilitation process of the area studied in this work.

Its two major developments are:

- In situ  $\gamma$  spectrometry of drum-type geometries based on detection efficiencies calculated with the ISOCS code.
- $\alpha$  and  $\beta$  Counting System using a low background gas-flow proportional counter, model MPC-9604 from Protean, to determine the gross  $\alpha$  and  $\beta$  activities.

The proposed protocol has significant economic advantages, as avoids performing radiochemical separations and their implicit long processing periods. It also minimizes the risks of contamination by making intensive use of in situ  $\gamma$ -ray spectrometry of drums.

Although the protocol proposed in this work was developed to address the problems of a specific area of CIEMAT, its use could be extended to other areas, always keeping in mind the characteristic nuclide vectors of these areas.

# 1 Objetivos

---

El Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas (CIEMAT) se halla inmerso desde el año 2000 en el Proyecto PIMIC (Plan Integral para la Mejora de las Instalaciones del CIEMAT), para el desmantelamiento de antiguas instalaciones nucleares y radiactivas, así como la rehabilitación de terrenos y edificios potencialmente impactados.

El Proyecto PIMIC se divide en dos: Rehabilitación y Desmantelamiento. El Proyecto PIMIC-Rehabilitación, ejecutado directamente por el CIEMAT, se ocupa de la rehabilitación de instalaciones, edificios y terrenos potencialmente impactados del CIEMAT. El Proyecto PIMIC-Desmantelamiento llevado a cabo por la Empresa Nacional de Residuos Radiactivos S.A. (ENRESA) [5], se encarga del desmantelamiento de aquellas instalaciones radiactivas existentes en el CIEMAT que no van a ser utilizadas y se pretende puedan servir para otras actividades de investigación.

Las actividades realizadas en el Proyecto PIMIC suponen la generación de materiales residuales con características físicas y radiológicas diversas, que deben ser caracterizados con el objeto de gestionarse adecuadamente y cumplir con la normativa vigente.

Los criterios para el control radiológico de los materiales residuales generados en las instalaciones nucleares vienen recogidos en la Instrucción IS-31 del CSN [6]. En esta Instrucción se ha considerado la publicación de carácter técnico, editada por la Comisión Europea "Radiation Protection 122 part 1: Practical Use of the Concepts of Clearance and Exemption" [7], en la que se incluyen los valores de niveles de desclasificación para un gran número de radionucleidos potencialmente presentes en los materiales residuales que se generan en las centrales nucleares. En el caso de la gestión de materiales residuales sólidos con contenido radiactivo generados en las instalaciones radiactivas en las que se manipulen o almacenen isótopos radiactivos no encapsulados, los niveles de actividad vienen registrados en la Orden ECO/1449/2003 [8].

La caracterización radiológica de estos materiales residuales puede requerir su consideración como residuos radiactivos, en cuyo caso se aplica el Plan de Gestión de Residuos Radiactivos del CIEMAT [1] y su retirada por ENRESA como gestor autorizado de residuos radiactivos [2, 3]. Sin embargo, una parte elevada de estos materiales residuales con contenido radiactivo, es susceptible de ser gestionados como residuos convencionales sin necesidad de un control radiológico posterior, mediante un proceso denominado desclasificación.

La optimización en la producción de materiales residuales, así como la minimización de la producción de residuos radiactivos, son factores de gran relevancia debido a sus importantes repercusiones económicas y medioambientales.

El objetivo final de esta trabajo de investigación es presentar el desarrollo de una nueva metodología, eficaz, sencilla y económica para la caracterización de materiales residuales generados en los trabajos llevados a cabo en la zona de "La Lenteja" dentro del Proyecto PIMIC-Rehabilitación del CIEMAT.

La metodología consiste en un proceso de caracterización de materiales residuales basado en la utilización de la técnica de espectrometría  $\gamma$  de alta resolución *in situ* con detector de Ge y en la determinación de los índices de actividad  $\alpha$  y  $\beta$  total con un contador proporcional de flujo continuo de gas, MPC-9604.

La caracterización de estos materiales residuales que presentan una contaminación de tipo residual debida a los radionucleidos artificiales  $^{90}\text{Sr}$  y  $^{137}\text{Cs}$  se va a efectuar aplicando la metodología que combina las siguientes técnicas experimentales (Figura 1):

- Espectrometría  $\gamma$  de alta resolución con detector de Ge ultrapuro (HPGe), haciendo uso de la calibración en eficiencia mediante el código ISOCS (*In Situ Object Counting System*) de Canberra [4], que permite una caracterización *in situ* de los materiales residuales, determinando los emisores  $\beta/\gamma$  de forma eficaz, segura y económica.
- Recuento mediante un contador proporcional de flujo continuo de gas de bajo fondo radiactivo, marca Protean, modelo MPC-9604. Esta técnica de medida proporciona una forma sencilla, precisa y rápida, para la determinación de los índices de actividad  $\alpha$  y  $\beta$  total. El índice de actividad  $\beta$  total permite determinar además de los emisores  $\beta/\gamma$ , los emisores  $\beta$  puros, como es el caso del  $^{90}\text{Sr}$ , que no son detectados mediante la técnica de espectrometría  $\gamma$ .



Figura 1. Caracterización de materiales residuales procedentes de la Parcela J, mediante espectrometría  $\gamma$  con ISOCS y recuento mediante contador proporcional de bajo fondo radiactivo, marca Protean, modelo MPC-9604.

La espectrometría  $\gamma$  *in situ* es una técnica en la que no es necesaria la toma de muestras físicamente; esto supone que los problemas habituales que presentan los métodos tradicionales de muestreo, son evitados mediante esta técnica. Por otra parte, mediante la utilización del software ISOCS se superan las dificultades tradicionales de calibración en eficiencias, que son tediosas y caras, permitiendo la determinación de la eficiencia del sistema detector para la mayoría de los objetos en el lugar de trabajo.

La determinación del  $^{90}\text{Sr}$  en operaciones de desmantelamiento se realiza normalmente mediante factores de escala (FE) [9, 10], que son la relación entre dos radionucleidos presentes en un material, siendo uno de ellos un radionucleido de fácil medida (RFM), emisor  $\gamma$  cuya actividad se puede determinar directamente mediante ensayos

no destructivos y se correlaciona con la de otros radionucleidos de difícil medida (RDM). Al RFM se le suele denominar radionucleido llave, y el otro (RDM) es un radionucleido no medible con el equipo con el que se determina el RFM. En general, los radionucleidos llave son el  $^{137}\text{Cs}$  y el  $^{60}\text{Co}$ , que se determinan fácilmente por espectrometría  $\gamma$  con una exactitud y precisión satisfactoria. La utilización de factores de escala es una práctica habitual en la caracterización de residuos radiactivos, pero la existencia de factores de escala para materiales desclasificables no es frecuente.

El  $^{90}\text{Sr}$  también suele determinarse mediante toma de muestras, posterior separación radioquímica para finalmente analizarse mediante la técnica de centello líquido. Sin embargo, la determinación de la actividad del  $^{90}\text{Sr}$  en este trabajo de investigación se estimará de forma indirecta, mediante la determinación del índice de actividad  $\beta$  total con el contador proporcional de flujo continuo de gas de bajo fondo, marca Protean, modelo MPC-9604 y suprimiendo las emisiones  $\beta$  del  $^{40}\text{K}$  y del  $^{137}\text{Cs}$  determinadas mediante espectrometría  $\gamma$  *in situ* con ISOCS.

La caracterización de materiales residuales aplicando esta metodología (espectrometría  $\gamma$  *in situ* con ISOCS y contador proporcional) se realiza de una forma simple y económica mediante la toma y preparación de pequeñas muestras que son caracterizadas de forma rápida y sencilla, evitándose la realización de separaciones radioquímicas, así como los largos periodos de tiempo que conllevaría su análisis, además de permitir un gran ahorro económico y la posibilidad de tomar decisiones en relación con los requisitos de acondicionamiento, transporte y almacenamiento de los materiales residuales [2, 3, 11-14].

Los objetivos marcados en este trabajo de investigación han sido los siguientes:

- Determinación de las condiciones óptimas de funcionamiento del contador proporcional de flujo continuo de gas de bajo fondo radiactivo, marca Protean, modelo MPC-9604 para su aplicación a la caracterización de materiales residuales.
- Validación de la técnica del contador proporcional en la caracterización de materiales residuales con el objeto de proceder a su desclasificación.
- Establecimiento de metodologías idóneas para la caracterización de bultos con materiales residuales mediante espectrometría  $\gamma$  *in situ* con el objeto de proceder a su desclasificación.
- Validación de las metodologías de caracterización de bultos mediante espectrometría  $\gamma$ .
- Establecimiento de una metodología de caracterización de los materiales residuales generados en los trabajos de rehabilitación de una zona impactada, denominada "La Lenteja", (Parcela J del CIEMAT), combinando ambas técnicas.





## 2 Introducción

---

### 2.1 Residuos radiactivos. Gestión y marco legal

Las actividades relacionadas con la producción de energía eléctrica en reactores nucleares, así como la utilización de radionucleidos en medicina, industria, agricultura e investigación dan lugar a la generación de residuos radiactivos, los cuales requieren una gestión compleja así como apreciables recursos dada su heterogeneidad y dispersión.

El término *gestión de los residuos radiactivos* agrupa un conjunto de actividades técnicas y administrativas para su acondicionamiento y control, de modo que se garantice una protección adecuada del medio ambiente y de las generaciones actuales y futuras.

La Ley 25/1964, de 29 de abril, sobre energía nuclear [15], en el apartado 9 del artículo 2 define *residuo radiactivo* como: *cualquier material o producto de deshecho, para el cual no está previsto ningún uso, que contiene o está contaminado con radionucleidos en concentraciones o niveles de actividad superiores a los establecidos por el Ministerio de Industria y Energía (hoy Ministerio de Industria, Energía y Turismo), previo informe del Consejo de Seguridad Nuclear*. De acuerdo con esta definición, el concepto de residuo radiactivo ha de quedar fijado por la superación de determinadas concentraciones o niveles de actividad que establece el Ministerio de Industria, Energía y Turismo, previo informe del Consejo de Seguridad Nuclear (CSN) [16].

Por su parte, la Directiva 96/29/EURATOM del Consejo [17], introdujo el concepto de desclasificación de materiales residuales y señaló los criterios radiológicos que deberán gobernar el proceso de autorización para que estos materiales puedan gestionarse por las vías convencionales de eliminación o reutilización. Su posterior transposición en el Reglamento de Instalaciones Nucleares y Radiactivas (RINR) [18], determinó los criterios radiológicos que resultan de aplicación para la desclasificación de materiales residuales.

En lo que respecta a los requisitos para la gestión de materiales residuales sólidos con contenido radiactivo generados en las instalaciones radiactivas en las que se manipulen o almacenen isótopos radiactivos no encapsulados, los niveles de actividad vienen registrados en la Orden ECO/1449/2003 [8], mientras que los criterios para el control radiológico de los materiales residuales generados en las instalaciones nucleares vienen recogidos en la Instrucción IS-31 del CSN [6].

En esta Instrucción se ha tenido en cuenta la denominada "Radiation Protection 122 part 1: Practical Use of the Concepts of Clearance and Exemption" [7], publicación editada por la Comisión Europea, en la que se incluyen los valores de niveles de desclasificación para un gran número de radionucleidos potencialmente presentes en los materiales residuales que se generan en las centrales nucleares.

Además, en dicha Instrucción se definen entre otros los siguientes términos:

- *Material residual*: aquel para el que el titular de la instalación donde se encuentra no prevé ningún uso y al que debe proporcionar una gestión adecuada. Se excluyen los materiales residuales líquidos y gaseosos cuya evacuación al medio ambiente deba ser expresamente autorizada.
- *Material residual impactado*: aquel que como consecuencia de un adecuado proceso de categorización no puede ser clasificado como material residual no impactado.
- *Material residual no impactado*: aquel para el que no existe posibilidad razonable de contener niveles de radiactividad superiores a los niveles del fondo radiactivo natural inherente al material.

Por otra parte, la Ley 25/1964 sobre energía nuclear también incluye los requisitos y principios básicos aplicables a la gestión de los residuos radiactivos, disponiendo que la gestión de residuos radiactivos y combustible nuclear gastado, así como el desmantelamiento y clausura de instalaciones nucleares, constituye un servicio público esencial que acometerá la Empresa Nacional de Residuos Radiactivos, S.A. (ENRESA) [5].

Una de las funciones asignadas a ENRESA, es la elaboración anual de un Plan General de Residuos Radiactivos (PGRR) para someterlo a la aprobación del Gobierno. Hasta la fecha, el Gobierno a propuesta del Ministerio de Industria y Energía ha aprobado seis Planes Generales de Gestión de los Residuos Radiactivos (PGGRR), el último en junio de 2006 [19].

Los planes generales de residuos radiactivos constituyen el documento básico de referencia donde se recoge de forma clara y concisa la política nacional en esa materia, estableciendo las líneas maestras para:

- Las actividades de gestión de los distintos tipos de residuos radiactivos generados en España.
- Las previsiones económicas para la ejecución de estas actividades.
- Los planes de investigación y desarrollo necesarios para mejorar la gestión de los residuos radiactivos.

## 2.2 Clasificación de los residuos radiactivos

Los residuos radiactivos se pueden clasificar en función a la gestión integral que corresponde en base al periodo de semidesintegración y de concentración de actividad de los radionucleidos que contienen, estando esta clasificación básicamente formada por dos grupos:

- Los denominados Residuos de Baja y Media Actividad (RBMA), que por sus características pueden ser almacenados temporalmente, tratados, acondicionados y almacenados definitivamente en las instalaciones de El Cabril, incluyendo entre ellos el subconjunto de Residuos de muy Baja Actividad (RBBA).

- Los denominados Residuos de Alta Actividad (RAA), que están formados fundamentalmente por el combustible nuclear gastado. Adicionalmente se incluyen en este conjunto todos aquellos Residuos de Media Actividad (RMA), que por sus características no son susceptibles de ser gestionados de forma final con los criterios establecidas por ENRESA para El Cabril [20, 21] y que por tanto requieren instalaciones específicas para ello.

Según los criterios establecidos por ENRESA, los RBMA contienen emisores  $\beta/\gamma$  con periodos de semidesintegración inferiores a 30 años, con radiactividad específica baja, que no generan calor en cantidades apreciables y, tengan una actividad  $\alpha$  mínima. La reducción de su actividad transcurridos 300 años permite equiparar su radiactividad a la del fondo natural.

Los RAA contienen emisores  $\beta/\gamma$  con periodos de semidesintegración superiores a 30 años, su radiactividad es elevada, pueden generar una cantidad significativa de calor por desintegración radiactiva y tienen actividad  $\alpha$  elevada y de larga vida. Estos residuos son generados principalmente por las centrales nucleares y son provenientes de combustible gastado o el reprocesado de éste.

El Almacén Centralizado de Residuos de Baja y Media Actividad de El Cabril es la instalación diseñada específicamente para el almacenamiento de los residuos de baja y media actividad en España. La mayor parte de los residuos generados en nuestro país, por sus características de actividad y vida media, es susceptible de ser almacenada en sus instalaciones.

## 2.3 Detectores de radiación

Los materiales residuales generados en el desmantelamiento de instalaciones radiactivas o en la limpieza de terrenos potencialmente impactados, pueden contener distintos radionucleidos, los cuales en su desintegración emiten partículas cargadas y radiación electromagnética, cuya detección y cuantificación es necesaria con el fin de determinar su actividad específica y así poder realizar su clasificación en residuos de media y baja actividad, muy baja actividad o incluso poder llegar a desclasificar dichos materiales.

En general, cuando un haz de partículas cargadas interactúa con la materia, tienen lugar una serie de procesos que ocasionan la atenuación del haz incidente. El proceso predominante es la interacción coulombiana, proceso de interacción debido a las fuerzas eléctricas producidas entre la partícula incidente y los electrones y núcleos del medio absorbente. Esta interacción produce una pérdida continua, aunque no uniforme, de la energía de la partícula hasta llegar a su detención tras recorrer una distancia caracterizada como alcance. Durante el proceso, tienen lugar un gran número de colisiones con los electrones atómicos. Por su parte, la radiación electromagnética, difiere notablemente en su interacción con la materia respecto a la de las partículas cargadas. Esta diferencia estriba en que la atenuación de la radiación electromagnética por efecto fotoeléctrico, efecto Compton o formación de pares es de carácter exponencial [22], por lo que no puede definirse un alcance como se hace para las partículas cargadas (Figura 2). Los fotones al atravesar la

materia tienen una cierta probabilidad de atenuación por unidad de longitud,  $\mu_L$ , que se denomina coeficiente de atenuación lineal, que es independiente del camino recorrido.

El efecto neto de la interacción de la radiación ionizante en diferentes tipos de detectores, es la aparición directa de una carga eléctrica en el volumen activo del dispositivo, tal como ocurre en los detectores de ionización (cámaras de ionización, contadores proporcionales y contadores Geiger-Müller) o detectores de semiconductor, como se verá más adelante. Sin embargo, existen otros tipos de detectores en los que la producción de una señal eléctrica es indirecta, son los denominados detectores de centelleo. Estos detectores se basan en el hecho de que determinados compuestos (materiales luminiscentes) reemiten parte de la energía que absorben en forma de luz visible o ultravioleta.

En general, se suele distinguir entre detectores, como meros contadores de partículas o fotones que alcanzan el dispositivo, y espectrómetros donde además de este recuento de partículas o fotones, se mide la energía de los eventos ionizantes y de esta manera se puede determinar cuál es la naturaleza del radionucleido emisor.

### 2.3.1 Detectores de ionización gaseosa

El fundamento básico de los detectores de ionización gaseosa es la colección de las cargas creadas al atravesar la radiación un volumen lleno de un determinado gas (aire, Xe, Ar,...) [22]. El gas se elige teniendo en cuenta las características de la radiación incidente y el modo de funcionamiento del detector. Cuando la radiación ionizante atraviesa el gas, algunas moléculas de éste quedan en estado excitado y otras son ionizadas. Los iones pueden ser creados directamente por la radiación o mediante el proceso de ionización secundaria en el cual los electrones producidos en una ionización previa adquieren energía suficiente para ionizar a su vez otras moléculas.

Al fenómeno de recogida de carga por medio de la acción del campo eléctrico se opone la recombinación, por la cual los iones negativos y positivos, o estos últimos y los electrones se combinan de nuevo para formar una molécula neutra. La intensidad de corriente recogida en función del campo eléctrico aplicado al gas, crece inicialmente hasta alcanzar un valor de saturación. En estas condiciones se dice que el detector funciona en modo de cámara de ionización. Cuando el potencial aplicado aumenta, algunos electrones adquieren energía suficiente como para ionizar a su vez otras moléculas, produciéndose ionización secundaria. Un diseño adecuado, implicaría que el número de iones totales creado en una interacción sea proporcional al de iones primarios formados, denominándose por ello a este tipo de detectores contadores proporcionales. El aumento del voltaje aplicado hace que comiencen a aparecer efectos no lineales, limitando la proporcionalidad entre la energía del suceso que interacciona y el tamaño del impulso producido. Si continúa aumentando el voltaje, los fotones de desexcitación de las moléculas llegan a interaccionar significativamente con el gas y las paredes del contador, generándose así nuevos electrones que dan origen a nuevas cascadas, fenómeno conocido como descarga Geiger (Figura 3). Los detectores que funcionan en este modo se conocen como Geiger-Müller.

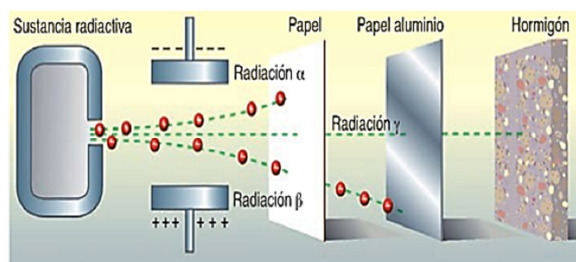


Figura 2. Poder de penetración de la radiación  $\alpha$ ,  $\beta$  y  $\gamma$ .

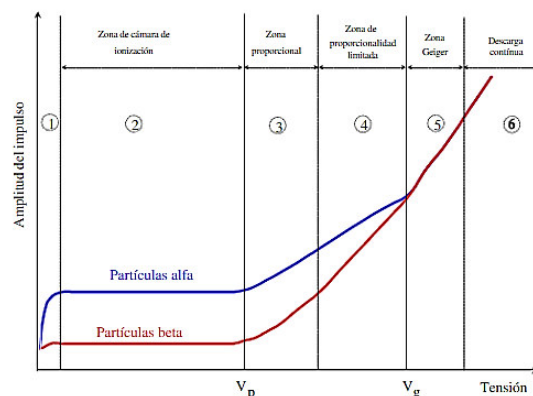


Figura 3. Regiones de operación de un detector de ionización gaseosa.

### 2.3.1.1 Contadores proporcionales

El principio físico de los contadores proporcionales se basa en la producción de pares iónicos por la interacción de las partículas  $\alpha$  y  $\beta$  con las moléculas de un gas [23]. El gas de recuento normalmente empleado es comercial y se le conoce como gas P-10 (90% Ar – 10 % CH<sub>4</sub>) [24]. La aplicación de un voltaje adecuado permite recoger las cargas eléctricas producidas y los impulsos generados son contados en una escala. La medida de las muestras y la discriminación entre los impulsos producidos por partículas  $\alpha$  y  $\beta$  se puede realizar a diferentes voltajes, medida en modo secuencial [25], o a un voltaje determinado, medida en modo simultáneo que permite obtener la tasa de recuento  $\alpha$  y  $\beta$  para un mismo voltaje de medida [26, 27].

Habitualmente se rodea al detector de un blindaje de Pb para disminuir el fondo radiactivo, es decir para atenuar la contribución de la radiación externa, sea ésta la radiación cósmica, la procedente de los radionucleidos pertenecientes a la serie radiactiva del <sup>238</sup>U natural (<sup>222</sup>Rn y sus descendientes) y la del <sup>40</sup>K de los materiales de construcción. Este fondo del sistema de medida puede ser reducido aún más con la ayuda de un segundo sistema detector, que permite eliminar la radiación cósmica de mayor energía, que es detectada en los dos sistemas de forma simultánea o coincidente (sistema de anticoincidencia).

Los contadores proporcionales de gas se utilizan en la determinación de los índices de actividad  $\alpha$  y  $\beta$  total a partir de una matriz que contiene emisores de ambos tipos. El índice de actividad  $\alpha$  total se define como la contribución global de todas las emisiones  $\alpha$  presentes en la muestra referidas al patrón de <sup>241</sup>Am, con el que se calibra el contador. El índice de actividad  $\beta$  total se define como la contribución de todas las emisiones  $\beta$  presentes en la muestra referidas al patrón de <sup>90</sup>Sr/<sup>90</sup>Y con el que se calibra el contador. En general, se puede considerar que la respuesta del sistema depende sólo de la energía de las partículas de la muestra y que es independiente de la muestra y de su actividad. Sin embargo, hay que tener en cuenta el espesor de la muestra, ya que diferentes grados de espesor pueden producir más o menos grado de autoabsorción de las partículas [28].

#### 2.3.1.1.1 Autoabsorción

Las fuentes radiactivas no están constituidas por lo general como una capa monoatómica sobre un soporte, sino que tienen un espesor considerable. Por lo tanto, la radiación emitida en el interior de la fuente (partículas cargadas) deberá atravesar una cierta distancia en su interior antes de abandonarla (Figura 4). Cuando la distancia a recorrer es mayor que el alcance de la radiación en el medio constituido por la fuente, no se produce emisión efectiva para ese suceso, puesto que toda la energía ha sido cedida al medio y la radiación ha sido absorbida íntegramente en la fuente. Este fenómeno se denomina autoabsorción [29].

Cuando se realizan las medidas experimentales, se pueden encontrar tres situaciones diferentes en el fenómeno de la autoabsorción en función del peso de la muestra [30-34]:

- Muestras infinitamente delgadas: en este caso se asume que la masa es despreciable y no es necesario realizar ninguna corrección de autoabsorción.
- Muestras infinitamente gruesas: sólo alcanzan el detector aquellas partículas emitidas en la parte de la muestra próxima al detector y con distancia inferior al alcance. Por tanto, el recuento es proporcional a la concentración de actividad y no depende de la cantidad de la muestra presente [35].
- Muestras de espesor intermedio: en este caso la autoabsorción depende del peso depositado en la plancheta y es necesario determinar dicha relación. Esta situación es la que habitualmente se encuentra en la preparación de muestras para determinar su índice de actividad  $\alpha$  y  $\beta$  total.

En la determinación del índice de actividad  $\alpha$  y  $\beta$  total, es necesario corregir la pérdida de eficiencia de recuento que se produce cuando aumenta el residuo final de la muestra. Esta corrección se realiza con el denominado factor de autoabsorción.

#### 2.3.2 Detectores de semiconductor

Los detectores de semiconductor se basan en la utilización de materiales semiconductores como el Si o el Ge, que presentan un comportamiento intrínseco (desde el punto de vista cristalográfico son absolutamente puros y sin ningún tipo de imperfección en su estructura cristalina). Los detectores de semiconductor se construyen bien por compensación de las impurezas aceptoras o donadoras que pueda presentar el material, o bien mediante la alta purificación del propio material semiconductor (detectores HPGe).

La estructura cristalina de los semiconductores, hace que los estados electrónicos se dispongan en las llamadas bandas de valencia de menor energía y banda de conducción de mayor energía. Ambas bandas están separadas por una zona de energías prohibidas que recibe el nombre de *gap* (Figura 5). Para el Si este gap es de unos 1,2 eV y para el Ge de 0,7 eV.

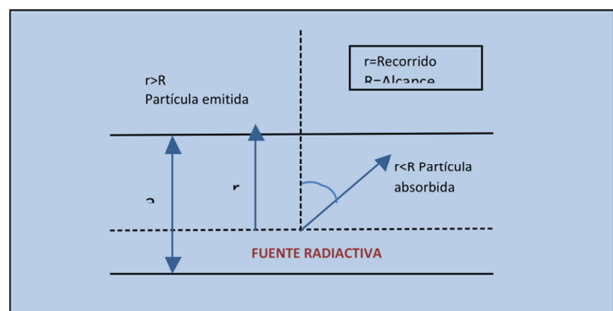


Figura 4. Autoabsorción de la radiación en la fuente radiactiva.

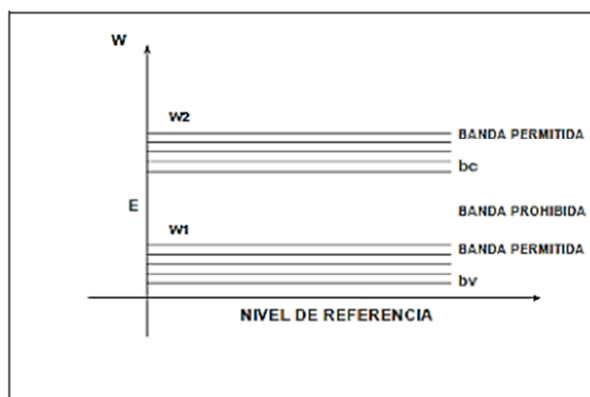


Figura 5. Bandas de valencia y bandas de conducción.

En el estado fundamental del cristal semiconductor, todos los electrones ocupan los estados de menor energía, completándose la banda de valencia y permaneciendo totalmente vacía la banda de conducción. En estas condiciones el material se comporta como un aislante.

La interacción de la radiación con el semiconductor promueve las transiciones electrónicas desde la banda de valencia a la de conducción, originando los correspondientes huecos en la banda de valencia. En estas condiciones, con cada suceso de interacción en el semiconductor, los portadores generados (huecos y electrones) provocan una pequeña corriente eléctrica cuando el detector está debidamente polarizado.

Para que el detector pueda funcionar de esta manera, es necesario que esté debidamente refrigerado, de lo contrario las excitaciones térmicas de electrones desde la banda de valencia a la de conducción, provocarían una elevada corriente que enmascararía la corriente producida por el efecto de la radiación.

#### 2.3.2.1 Detector de Ge ultrapuro

Los equipos de espectrometría  $\gamma$  están basados en la medida y análisis de los espectros energéticos de la radiación emitida por los radionucleidos, contenidos en las muestras de distinta naturaleza sometidas a la caracterización [36]. En la Figura 6 se presenta un esquema de los componentes electrónicos necesarios para realizar la espectrometría  $\gamma$ ; el elemento principal es el detector, que está constituido por un monocristal semiconductor de Ge de alta pureza (HPGe).

El funcionamiento del sistema espectrométrico  $\gamma$  es el siguiente [37]: al interactuar un fotón  $\gamma$  con el detector de Ge, se crea una carga eléctrica a partir de la cual se genera una señal de unos pocos mV, que es conformada por el preamplificador para poder ser tratada posteriormente. La señal pasa al amplificador, que realiza las siguientes funciones: i) amplificación de la señal recibida del preamplificador, ii) conformación del pulso de entrada, iii) eliminación de las variaciones del fondo (restauración de la línea base de salida) y iv) rechazo de los pulsos apilados. La señal que sale del amplificador es analógica y debe ser convertida en una señal digital, utilizándose para ello el conversor analógico digital



(ADC). Una vez realizada la conversión de la señal, ésta pasa al multicanal que se encarga de clasificar los impulsos en función de su amplitud y generar un histograma de distribución de altura de impulsos conocido como espectro. Cada uno de los tamaños en los que se clasifica los impulsos se denomina canal. En los sistemas más modernos, la amplificación y conversión de la señal se realiza con equipos digitales.

Las calibraciones en energía y eficiencias de los detectores  $\gamma$  se realizan empleando patrones que proporcionen picos bien definidos y distribuidos en el intervalo de energía de interés; generalmente se utilizan mezclas de radionucleidos que se denominan cócteles. En todos los casos la muestra deberá ser trazable en actividad a un laboratorio autorizado. En el caso de los patrones utilizados en este trabajo de investigación, los certificados han sido emitidos por el Laboratorio de Metrología de Radiaciones Ionizantes (LMRI)<sup>1</sup> perteneciente al CIEMAT. El intervalo de actividades calibrado va de 59 keV del  $^{241}\text{Am}$  a 1836 keV del  $^{88}\text{Y}$ .

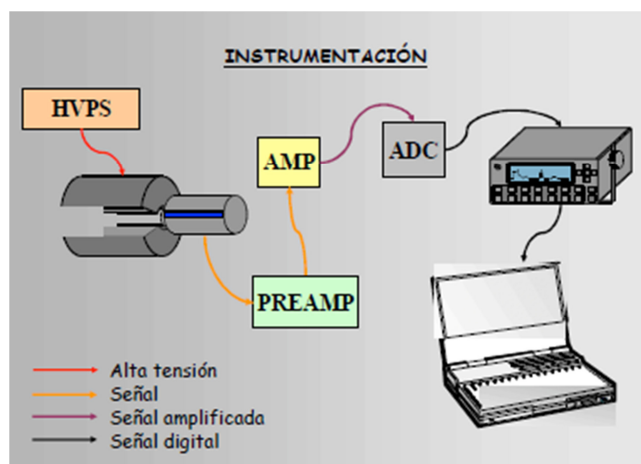


Figura 6. Esquema de sistema de espectrometría  $\gamma$ .

Mediante la calibración en energía se asigna a cada canal la energía correspondiente de forma que se puedan identificar los emisores  $\gamma$  a partir de las estructuras llamadas picos de absorción total o fotopicos que corresponden a aquellos fotones que al interaccionar con el detector han dejado en éste toda su energía. La calibración se realiza midiendo fuentes con una mezcla de emisores  $\gamma$  cuya composición y energía es conocida. La energía en función del canal se ajusta con una función lineal.

La calibración en eficiencias se realiza con el objeto de obtener un análisis cuantitativo, mediante la cual, es posible determinar a partir del área del fotopico emitido por un elemento de una muestra, la actividad presente en ésta. Para ello es preciso disponer de un conjunto de radionucleidos emisores  $\gamma$  de actividad conocida, estableciéndose la relación entre la tasa de fotones detectados y la actividad correspondiente del radionucleido. La representación gráfica de la eficiencia es una función exponencial que crece desde las energías más bajas, alcanza un máximo y luego desciende hasta el intervalo de altas energías. La calibración en eficiencia puede hacerse de forma experimental o mediante el empleo de códigos matemáticos basados en Monte Carlo [38-44]. Las fuentes empleadas para la calibración experimental, deben prepararse en las mismas condiciones que las muestras que serán analizadas posteriormente, ya que la eficiencia de detección varía en función de la geometría y densidad de la fuente.

Para el caso concreto de este trabajo de investigación, la geometría de los bultos con materiales residuales que se ha utilizado ha sido la del tipo bidón de acero inoxidable de 0,22 m<sup>3</sup>, siendo muy compleja la obtención de una calibración en eficiencias mediante la

<sup>1</sup> Laboratorio de referencia nacional respecto a los patrones de radiaciones ionizantes.

realización de una calibración experimental que contemple todas las posibilidades que pueden acontecer. La calibración en eficiencias se ha realizado mediante un código matemático basado en Monte Carlo denominado ISOCS (In Situ Object Counting System), que ha sido desarrollado por Canberra. ISOCS es un código que se basa en una caracterización previa del detector  $\gamma$  mediante un conjunto de simulaciones de Monte Carlo específicas que se realizan con el código MCNP [45-47], incluye además modelos que permiten reproducir una gran parte de las geometrías de muestras que suelen encontrarse en la práctica.

Estos códigos de Monte Carlo contemplan en su diseño la atenuación de la radiación  $\gamma$  debido a su interacción con la materia. La determinación de la atenuación de la radiación  $\gamma$  se realiza mediante el coeficiente de atenuación lineal  $\mu_L$ , a través de una relación de tipo exponencial, mediante la ecuación 1.

$$\frac{I}{I_0} = e^{-\mu_L x} \quad <1>$$

donde,

$I$  es la intensidad de la radiación  $\gamma$  de una determinada energía después de la atenuación producida al atravesar un absorbente;

$I_0$  es la intensidad inicial de la radiación  $\gamma$  de una determinada energía;

$\mu_L$  coeficiente de atenuación lineal;

$x$  es el espesor de absorbente expresado en las mismas unidades que el coeficiente de atenuación lineal.

El uso del coeficiente de atenuación lineal está limitado debido a que varía con la densidad del absorbente, incluso aunque el material absorbente sea el mismo. Por ello, el coeficiente de atenuación másico es mucho más utilizado y se define como:

$$\mu_M = \frac{\mu_L}{\rho} \quad <2>$$

donde  $\rho$  representa la densidad del medio en gramos dividido centímetro cúbico. De esta forma, para una radiación  $\gamma$  determinada, el coeficiente de atenuación másico no cambia con el estado físico del absorbente.

En términos del coeficiente de atenuación másico, la ley de atenuación para los rayos  $\gamma$  adopta la siguiente forma:

$$\frac{I}{I_0} = e^{-\mu_M \cdot \rho \cdot x} \quad <3>$$

## **2.4 Proyecto PIMIC**

El Plan Integral para la Mejora de las Instalaciones del CIEMAT (Proyecto PIMIC), se inició en el año 2000, con el objetivo fundamental de dismantelar las instalaciones nucleares y radiactivas paradas, así como de rehabilitar y actualizar las infraestructuras generales del Centro. Las actividades del Proyecto PIMIC están reguladas por el Reglamento de Instalaciones Nucleares y Radiactivas [18] y controladas por el Consejo de Seguridad Nuclear.

El Proyecto PIMIC se divide en dos: Rehabilitación y Dismantelamiento. El Proyecto PIMIC-Rehabilitación ejecutado directamente por el CIEMAT, se ocupa de la rehabilitación de instalaciones, edificios y terrenos potencialmente impactados del CIEMAT. El Proyecto PIMIC-Dismantelamiento llevado a cabo por ENRESA, se encarga del dismantelamiento de aquellas instalaciones radiactivas existentes en el CIEMAT que no van a ser utilizadas y se pretende puedan servir para otras actividades de investigación.

Las actividades realizadas en el marco del Proyecto PIMIC-Rehabilitación, generan materiales residuales sólidos de características físicas y radiológicas diversas que deben ser gestionados adecuadamente [48]. La optimización en la gestión de estos materiales requiere de un proceso de desclasificación, actuación administrativa mediante la cual determinados materiales residuales con contenido radiactivo generados en las instalaciones nucleares o radiactivas, pueden ser gestionados como residuos convencionales sin necesidad de un posterior control radiológico, que permite que aquellos materiales para los que se ha confirmado que su contenido radiactivo es inferior a los niveles de desclasificación autorizados [7], dejen de estar sometidos al control regulador.

En la Figura 7 se presenta un esquema que detalla las diferentes fases que componen todo el proceso de caracterización de materiales residuales generados en PIMIC-R, desde que se acomete una obra, hasta la gestión de los materiales residuales bien como materiales desclasificados o bien como residuos radiactivos.

En la fase previa a la rehabilitación, se realiza una caracterización radiológica inicial de los materiales (mediante datos radiológicos existentes y en caso necesario con muestreos y/o medidas adicionales), que permite por una parte estimar el volumen de residuos radiactivos y de materiales desclasificables que se van a generar, y por otra establecer el isotópico-tipo asociado a los distintos materiales según su procedencia [49]. El isotópico-tipo, es el tanto por uno de todos los radionucleidos presentes en el material o residuo, tanto emisores  $\alpha$ ,  $\beta$  puros y  $\beta/\gamma$ . Se elabora a partir de la concentración media de actividad (CMA) de cada uno de los emisores presentes en el material o residuo.

Así mismo, a partir esta caracterización radiológica inicial se establecen los factores de escala (FE) [9, 10], que son la relación entre dos radionucleidos presentes en un material, siendo uno de ellos un radionucleido de fácil medida (RFM), emisor  $\gamma$  cuya actividad se puede determinar directamente mediante ensayos no destructivos y se correlaciona con la de otros radionucleidos de difícil medida (RDM). Al RFM se le suele denominar radionucleido llave, y el otro (RDM) es un radionucleido no medible con el equipo con el que se determina

el RFM. En general, los radionucleidos llave son el  $^{137}\text{Cs}$  y el  $^{60}\text{Co}$ , que se determinan fácilmente por espectrometría  $\gamma$ , siendo habitual el uso del  $^{137}\text{Cs}$  como radionucleido llave en las actuaciones de PIMIC-Rehabilitación. Los radionucleidos de difícil determinación son radionucleidos emisores  $\beta$  puros y los emisores  $\alpha$  con emisiones  $\gamma$  de baja energía, que deben ser determinados en laboratorio.

Posteriormente en una primera fase, se realiza una clasificación inicial mediante una segregación en origen de los materiales residuales, en la que se tiene en cuenta criterios físicos y radiológicos [50, 51]. Los materiales residuales, en base a sus características físicas, pueden clasificarse de la siguiente forma: tierras y escombros, pulverulentos, chatarras metálicas (férreas y no férreas), maderas, lodos y otros materiales (vidrio, plásticos etc.) [50]. Y en base a medidas radiológicas *in situ* (valores de tasa de dosis y contaminación superficial), se establecen unos niveles de acción (NA) que permiten la segregación inicial de los materiales [51], clasificándolos como materiales desclasificables o materiales radiactivos.

- **Materiales desclasificables:** Aquellos materiales con un nivel de actividad estimada inferior a los niveles de desclasificación autorizados [7].
- **Materiales radiactivos:** Aquellos materiales procedentes de actuaciones radiológicas que no han sido declarados como desclasificables.

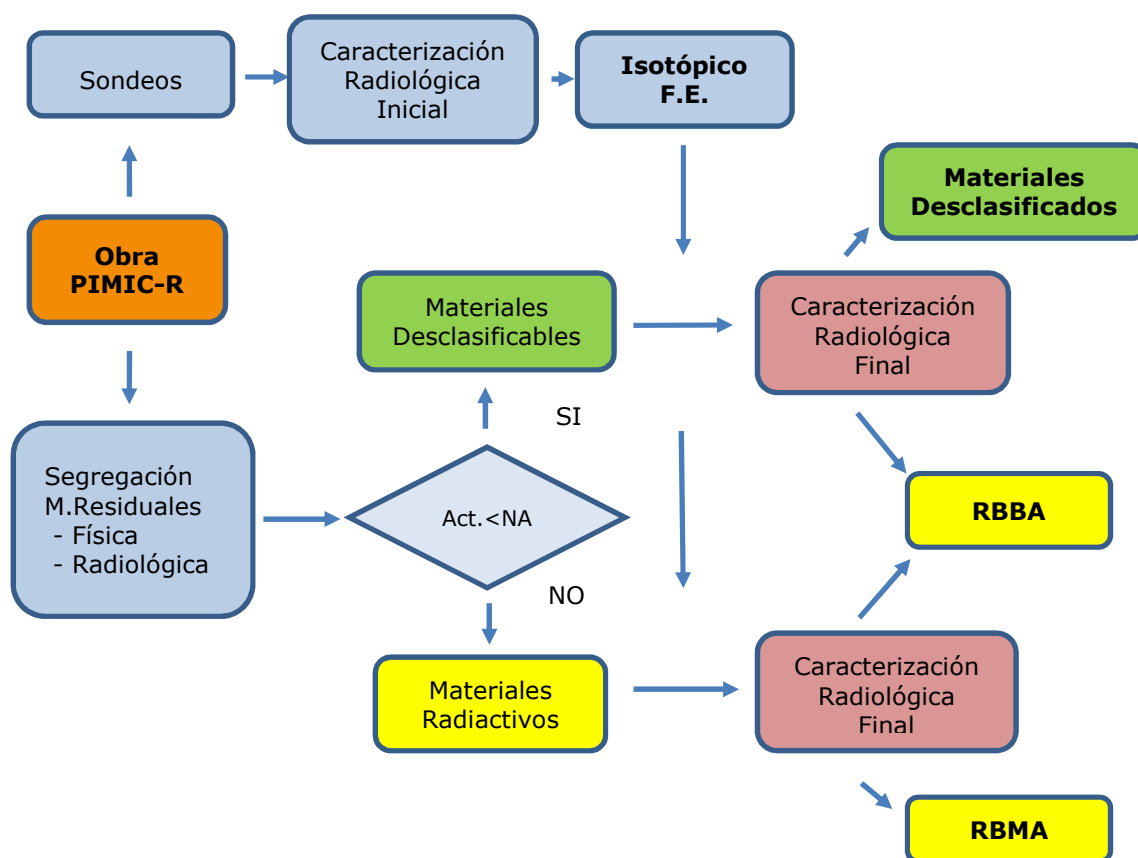


Figura 7. Esquema global para la caracterización de los materiales residuales generados en PIMIC-Rehabilitación.

El objetivo de esta fase es garantizar la homogeneidad física y radiológica de los materiales a desclasificar. Al final de esta fase, todo material debe tener asignado el isotópico-tipo y los factores de escala aplicables.

Los materiales generados en base a su misma naturaleza física y con un contenido radiactivo semejante, se almacenan en diversos tipos de embalaje, que son seleccionados con criterios de volumen, radiológicos, y de su gestión posterior como RBMA, RBBA o desclasificables.

Los tipos de embalaje a utilizar son principalmente los siguientes:

- Bidones metálicos con un volumen de 0,22 m<sup>3</sup>, hasta 700 kg (homologados conforme los criterios de ENRESA);
- CMB: volumen de 1,50 m<sup>3</sup> y hasta 3500 kg;
- CMD: volumen de 2,00 m<sup>3</sup> y hasta 3000 kg;
- CMT: volumen de 1,32 m<sup>3</sup>;
- BB: big bag, volumen de 1 m<sup>3</sup>.

De todos los embalajes, el bidón metálico de 0,22 m<sup>3</sup> es uno de los más ampliamente utilizados y el que se ha empleado en la realización de este trabajo de investigación.

Los niveles de desclasificación, son valores autorizados de concentración de actividad por debajo de los cuales los materiales dejan de estar bajo el control regulador del CSN, y material desclasificado es el material para el que se ha confirmado que su contenido radiactivo es inferior a los niveles de desclasificación autorizados [7]. El material desclasificado puede ser:

- Material desclasificado incondicional: aquel cuya concentración de actividad es inferior a los niveles autorizados de desclasificación incondicional (ND1).
- Material desclasificado condicional: aquel cuya concentración de actividad es inferior a los niveles autorizados para la desclasificación condicional genérica (ND2) o específica (ND3).

Posteriormente, en una segunda fase se realiza la caracterización final de los materiales residuales, determinándose la concentración de actividad en el material y teniendo en cuenta la incertidumbre asociada al proceso utilizado. Si la concentración de actividad es igual o menor a la establecida por el Ministerio de Industria, Turismo y Comercio previo informe del CSN, el material se evacúa por vía convencional. En caso contrario se gestiona como residuo radiactivo.

La clasificación final de los materiales desclasificables, una vez realizado el proceso de caracterización, implicará que éstos puedan ser desclasificados, en cuyo caso pueden ser evacuados fuera del Centro como un residuo convencional desde el punto de vista radiológico, o su reclasificación como residuo RBBA. Mientras que la clasificación final de los residuos radiactivos como RBBA o RBMA determinará sus condiciones de almacenamiento y transporte [11-14].

### 2.4.1 Tipos de bidones generados en el Proyecto PIMIC

Los materiales residuales generados en las operaciones realizadas dentro el Proyecto PIMIC-R pueden ser diversos atendiendo a su tipología compactable y no compactable.

Estos materiales residuales son gestionados directamente por el CIEMAT, por tanto tienen que ser acondicionados, operación que se realiza en la Instalación Radiactiva IR-17 "Acondicionamiento de residuos sólidos radiactivos y almacenes de residuos radiactivos de baja actividad". Sin embargo, se tienen que cumplir una serie de requisitos administrativos y técnicos [52], para la aceptación de estos bultos primarios generados que posteriormente vayan a ser acondicionados en unidades de almacenamiento para su ubicación en las celdas de almacenamiento de RBMA de El Cabril.

Los bultos primarios se clasifican según los criterios de aceptación de bultos primarios de RBMA de ENRESA en [52]:

- Bultos heterogéneos con residuos compactables en bidones metálicos de 0,22 m<sup>3</sup>.
- Bultos heterogéneos con residuos no compactables en bidones metálicos de 0,22 m<sup>3</sup>.
- Bultos heterogéneos con residuos sólidos pulverulentos en bidones metálicos de 0,22 m<sup>3</sup>.
- Bultos homogéneos con residuos líquidos inmovilizados en bidones metálicos de 0,22 m<sup>3</sup>.

#### 2.4.1.1 Bultos heterogéneos con residuos compactables

Estos residuos tanto si son de proceso como si proceden de limpieza y remodelación de instalaciones, pueden contener: papeles, plásticos, trapos, algodón, metales de chapa fina, filtros, prefiltros, máscaras, etc.

El acondicionamiento consiste en la introducción de los residuos sólidos en bidones metálicos. La compactación de los mismos se realiza mediante una compactadora marca NUSPACTOR, modelo N-85-D hasta completar su llenado.

El bulto producido (bidón metálico + residuo compactable) es un bulto heterogéneo que cumple las especificaciones exigidas por ENRESA para la retirada de residuos sólidos y su almacenamiento en El Cabril. En estos casos, el bidón metálico junto con la matriz constituyen la primera barrera de contención radiológica.

#### 2.4.1.2 Bultos heterogéneos con residuos no compactables

Estos residuos se generan como consecuencia de operaciones de rehabilitación o descontaminación de instalaciones. Los bultos generados están constituidos por un bidón metálico en cuyo interior se depositan los residuos inmovilizándolos con conglomerante hidráulico, que rellena los huecos existentes hasta completar el máximo grado de llenado compatible con la colocación de la tapa de cierre del bidón.

Los materiales suelen consistir en piezas metálicas procedentes de equipos, bombas, accesorios..., o bien residuos de naturaleza diversa como materiales estructurales, materiales de desmantelamiento de edificios de naturaleza no pulverulenta (plásticos, maderas etc.), que no son compactables.

Los residuos heterogéneos no compactables se depositan en el interior del bidón directamente, previa segregación. El bidón se llenará al máximo posible, optimizando su capacidad con la posterior adición de mortero de inmovilización.

#### 2.4.1.3 Bultos heterogéneos con residuos sólidos pulverulentos

Este tipo de bultos está constituido por un bidón metálico al que previamente se le dota de una carcasa interior de mortero, en cuyo interior se depositan los residuos inmovilizándolos con conglomerante hidráulico, y una vez completado el envase, se cubre con una capa de mortero previa a la tapa metálica de cierre del bidón.

Los materiales en este caso son lodos secos o sólidos pulverulentos exentos de humedad apreciable. Proceden de fondos de tanques, equipos y conducciones de proceso y de servicios auxiliares; terrenos y suelos contaminados etc. La diversidad de orígenes de estos residuos hace que sus características no sean uniformes.

#### 2.4.1.4 Bultos homogéneos con residuos líquidos inmovilizados

Este tipo de bulto está constituido por un bidón metálico en cuyo interior se depositan los residuos líquidos inmovilizados con conglomerante hidráulico, el resultado final es un bulto homogéneo.

## 2.5 Caracterización isotópica de materiales residuales

Los bultos generados en los procesos de rehabilitación y/o desmantelamiento, suelen contener emisores  $\gamma$  de fácil medida, emisores  $\beta$  puros y emisores  $\alpha$ , ambos de difícil medida.

El proceso físico fundamental que tiene lugar en un bulto de residuos radiactivos es la desintegración radiactiva de los radionucleidos que contiene, que en función del inventario isotópico, puede ser:

- Desintegración  $\beta$  pura. El radionucleido emite una partícula  $\beta$  (electrón o positrón).
- Desintegración  $\beta/\gamma$ . El radionucleido además de emitir una partícula  $\beta$ , emite generalmente uno o varios fotones  $\gamma$  de fácil detección.
- Transición isomérica. El radionucleido se encuentra en un estado metaestable y decae emitiendo generalmente un fotón  $\gamma$ .
- Captura electrónica. El núcleo del radionucleido toma un electrón de la corteza orbital, emitiendo posteriormente algunos rayos X y electrones Auger de baja energía.

- Captura electrónica  $\gamma$ . El núcleo del radionucleido toma un electrón de la corteza orbital, emitiendo posteriormente rayos X y electrones de baja energía en los procesos de reordenación atómica que siguen a la captura. En ocasiones, el proceso conduce a un estado excitado del radionucleido hijo cuya desexcitación puede dar lugar a la emisión de fotones de mayor energía y, por lo tanto, más fácilmente detectables.
- Desintegración  $\alpha$ . El radionucleido emite una partícula  $\alpha$ , acompañada generalmente de varias emisiones  $\gamma$  de baja energía y rayos X.

La cuantificación de la actividad de los radionucleidos presentes en un bulto de materiales residuales, se puede realizar mediante diferentes metodologías:

1. Determinaciones directas:

- Métodos no destructivos para radionucleidos de fácil medida (espectrometría  $\gamma$ ).
- Métodos destructivos por extracción de muestras para radionucleidos de difícil medida (radioquímica).

2. Determinaciones indirectas:

- Métodos teóricos, que correlacionan la actividad con la tasa de dosis en contacto, y son los empleados en la determinación de la actividad de radionucleidos de fácil medida, emisores  $\gamma$  fácilmente detectables directa o indirectamente desde el exterior de un bulto de residuos. Esta metodología no es válida para la desclasificación.
- Métodos semiempíricos, basados en la correlación existente entre los radionucleidos de fácil medida y los de difícil medida, que son utilizados para la cuantificación de estos últimos, ya que es imposible su detección por métodos no destructivos. Sin estos métodos sería necesaria la aplicación sistemática de análisis destructivos (radioquímica) para su cuantificación.

Los métodos de medida varían fundamentalmente en función del tipo de emisión radiactiva, además de que para un mismo tipo de emisores, la técnica de medida puede llegar a variar sustancialmente en función de la intensidad de emisión de la partícula y/o fotón emitido.

Los radionucleidos de fácil medida, generalmente son radionucleidos que se desintegran mediante emisión  $\beta/\gamma$  o por captura electrónica, con uno o varios fotones  $\gamma$  asociados cuya energía de emisión y rendimiento hace posible que sean fácilmente detectados y cuantificados por técnicas relativamente sencillas de fácil medida. La medida directa de este tipo de emisores se realiza por la técnica de espectrometría  $\gamma$  bien a una muestra del material residual tomada durante el llenado del contenedor (método destructivo) o bien al bulto entero (método no destructivo).

La técnica de espectrometría  $\gamma$  aplicada a una muestra (método destructivo) es capaz de cuantificar los emisores  $\gamma$  simultáneamente en una misma medida, ya que las emisiones  $\gamma$  de los radionucleidos son de energías diferentes y perfectamente conocidas antes de la ejecución de la medida mediante una caracterización inicial.



La espectrometría  $\gamma$  directa de un bulto entero suele detectar con una exactitud aceptable emisiones superiores a 200 keV, siendo las emisiones con una energía inferior a la indicada atenuadas por el propio material así como por el bidón.

Por su parte, los radionucleidos de difícil medida necesitan técnicas radioquímicas para su determinación mediante técnicas directas. Para emisores  $\beta$  puros se emplea centelleo líquido; para emisores que decaen por captura electrónica o emisores  $\beta$  con fotones  $\gamma$  de baja energía, se usa el centelleo líquido o la espectrometría  $\gamma$  de baja energía y para emisores  $\alpha$ , la espectrometría  $\alpha$  con detectores de semiconductor (Si).

### 2.5.1 Caracterización no destructiva mediante espectrometría $\gamma$

La espectrometría  $\gamma$  con detector de Ge de alta pureza (HPGe) es una de las técnicas de análisis más ampliamente utilizada en la caracterización de residuos radiactivos [42, 43, 53-58]. Su intervalo de aplicación se extiende desde la caracterización en los procesos de producción de residuos, los procesos de descontaminación y desclasificación en las operaciones de desmantelamiento [59-67], el control y aseguramiento de la calidad en la producción de residuos, hasta la determinación del inventario para almacenamiento de residuos radiactivos. Es necesario resaltar, que dependiendo del material a caracterizar o del nivel de detección exigido en la desclasificación, algunas veces, ésta será la única técnica viable para determinar la concentración de actividad de dichos bultos.

La metodología para la exploración de bultos de residuos por espectrometría  $\gamma$  de alta resolución, debe asegurar la medida del volumen completo del bulto de residuos, bien mediante una única medida de la totalidad del volumen, o dividiendo éste a través de exploraciones verticales, horizontales o combinación de las anteriores. El procedimiento de exploración  $\gamma$  de un bulto de residuos tipo bidón, puede ser dividido en un número definido de medidas a diferentes posiciones relativas del detector con respecto al bidón. El número de posiciones de medida para una rotación se definen como sectores, el número de posiciones en altura se definen como segmentos, y el número de movimientos discretos traslacionales o posiciones angulares se denominan pasos [68].

Se han desarrollado numerosos métodos de medida basados en la espectrometría  $\gamma$ ; entre las técnicas más relevantes se encuentran las conocidas como *Segmented Gamma Scanning* (SGS) y *Tomografic Gamma Scanning* (TGS):

- La SGS es una técnica utilizada ampliamente para el análisis de bidones con residuos radiactivos [69]. El bidón de residuos radiactivos se divide en varios segmentos y para cada segmento, el sistema de detección toma un espectro  $\gamma$  mientras el bidón está girando delante del detector con un colimador previo (Figura 8). La precisión de esta técnica se basa en asumir que tanto la matriz como la actividad son uniformes en cada segmento [70, 71]. Por este motivo se han propuesto distintas opciones para detectar y corregir esta falta de homogeneidad [72-75], y alternativas para aumentar la precisión de dicha técnica, donde no se asume una distribución homogénea de la actividad en la caracterización de bidones con residuos radiactivos [76, 77]. Además, hay otra serie de factores que también afectan como son el tamaño de partícula del material nuclear [71, 78] y la distancia bidón-detector [79].

Tanto el presupuesto económico necesario para la implantación de la técnica SGS, como los tiempos de ensayo necesarios para su ejecución, son elevados si se comparan con la técnica de espectrometría  $\gamma$  no destructiva con medida integral sobre el bidón.

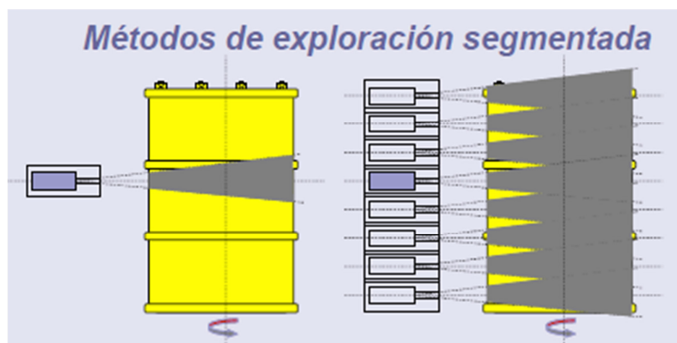


Figura 8. Métodos de exploración segmentada.

Además, la técnica SGS presenta errores debidos a la falta de homogeneidad en la matriz así como en la distribución de la actividad que pueden ser significativamente reducidos mediante la técnica de imagen *Tomographic Gamma Scanner* (TGS).

- La TGS es una técnica que combina la espectrometría  $\gamma$  de alta resolución con técnicas de reconstrucción de imagen en tres dimensiones [80, 81]. Para aquellos casos en que la actividad no esté distribuida uniformemente y la matriz no sea homogénea, la técnica TGS presenta mayor precisión si se compara con métodos tradicionales que no llevan asociada imagen. Esta técnica es adecuada para matrices de residuos con densidades bajas o moderadas ( $0 - 1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) [82].

Mediante la técnica tomográfica, se obtienen mejores resultados que con la técnica segmentada, aunque la técnica tomográfica también supone un coste económico entre 1,5 y 3 veces superior a la técnica SGS y por otra parte los tiempos de ensayo necesarios están entre 2 y 5 veces los tiempos de ensayo de la técnica segmentada. En cualquier caso, la implantación de cualquiera de las dos técnicas (SGS y TGS) resulta costosa si se las compara con la técnica de espectrometría  $\gamma$  integral *in situ*, por su elevado precio además de los largos tiempos de ensayo, aun teniendo en cuenta las ventajas que presentan ambas técnicas.

### 2.5.2 Propuesta de nueva metodología

Como se ha comentado anteriormente, las actuaciones en el marco del Proyecto PIMIC-Rehabilitación, suponen la generación de materiales residuales sólidos de características físicas y radiológicas diversas que deben ser gestionados adecuadamente. El contenido radiactivo de dichos materiales puede requerir su consideración como residuos radiactivos, a los que aplica el Plan de Gestión de Residuos Radiactivos del CIEMAT [1] y su retirada por ENRESA como gestor autorizado de residuos radiactivos. Sin embargo, una parte importante de los materiales residuales con contenido radiactivo producidos por PIMIC-Rehabilitación, son susceptibles de ser gestionados como residuos convencionales mediante un proceso denominado desclasificación, sin necesidad de un posterior control radiológico.

La caracterización de materiales residuales mediante la utilización de la espectrometría  $\gamma$ , es una de las técnicas más utilizadas debido a la gran información que se

obtiene de la misma. Dicha técnica requiere de una calibración en eficiencias y energías del sistema detector y además puede ser aplicada de dos formas distintas:

- Mediante la obtención y preparación de muestras y su posterior análisis en laboratorio, ensayo destructivo, (técnica tradicional de análisis).
- Mediante ensayo no destructivo *in situ* de un bulto entero.

Cuando la técnica de espectrometría  $\gamma$  se aplica como técnica de análisis en laboratorio (técnica tradicional de análisis), la toma de la muestra suele ser uno de los mayores problemas. Algunas muestras son difíciles de obtener físicamente (terrenos del subsuelo, hormigón, materiales activados, materiales dentro de tanques o tuberías etc.), y otras muestras son físicamente peligrosas de tomar (muestras muy activas como resinas, almas de hormigón o acero, gases presurizados, artículos tóxicos o corrosivos etc.). Además, hay que contar con una serie de inconvenientes, como son la dificultad de encontrar una muestra representativa para su análisis en el laboratorio, la falta de homogeneidad local, la necesidad de realizar medidas de ítems enteros o partes de él, etc. Todos estos inconvenientes se pueden solventar haciendo uso de ensayos no destructivos mediante la técnica de espectrometría  $\gamma$  *in situ*, evitando el transporte de muestras, su preparación en el laboratorio, los costes económicos, dosis, riesgos de lesión y tiempo asociado con estas tareas. Sin embargo, cuando la espectrometría  $\gamma$  *in situ* se aplica a la caracterización de residuos radiactivos como técnica no destructiva, la realización de las calibraciones en eficiencias y energías presentan una serie de problemas:

- Preparación ardua y tediosa.
- Dificultad de manejo y almacenamiento.
- Posibles riesgos de contaminación.

Debido a estas dificultades, una opción es realizar una calibración numérica en función de los parámetros más relevantes que influyen en la respuesta del sistema detector como son:

- Distribución de la actividad.
- Matriz (composición, densidad y distribución) y blindajes.
- Geometría y dimensiones del contenedor.

Estos inconvenientes que presenta la caracterización de residuos radiactivos se solventan mediante espectrometría  $\gamma$  *in situ* no destructiva, técnica donde no es necesario tomar la muestra físicamente y que mediante el uso del software In Situ Object Counting System (ISOCS) de Canberra [4], que utiliza un código Monte Carlo para la calibración en eficiencias y permite definir una amplia variedad de geometrías y distribuciones de actividad en el lugar de trabajo.

Las ventajas de las medidas *in situ* sobre los métodos tradicionales que necesitarían la realización de un muestreo incluyen además:

- Reducción de grandes errores potenciales asociados con el muestreo al azar en distribuciones de actividad no homogéneas.

- Reducción de costes económicos y mejora en la seguridad debido a la minimización del proceso de muestreo.
- Eliminación de tiempo muerto entre la toma de muestras y la disponibilidad de resultados analíticos de radionucleidos específicos.

Los ensayos no destructivos mediante espectrometría  $\gamma$  de alta resolución con detector de HPGe, como ya se ha comentado, son una herramienta ampliamente utilizada tanto en el proceso de caracterización de residuos radiactivos como en la desclasificación de materiales [61, 63, 64], ya que presenta límites de detección bajos, parámetro imprescindible en el proceso de desclasificación. Por tanto, la metodología de medida para la caracterización de materiales residuales y concretamente para el caso de los materiales desclasificables, donde se necesita que la actividad mínima detectable (AMD) de la técnica sea inferior al 50% del valor del nivel de desclasificación, es utilizar un sistema rotacional con geometría abierta con un ángulo sólido que posibilite la medida integral del bidón por parte del detector (Figura 9).

Sin embargo, en los procesos de desclasificación de materiales se exige la comprobación de los niveles de actividad de radionucleidos concretos, cuya determinación tiene la dificultad de no poder realizarse mediante espectrometría  $\gamma$  *in situ* al ser radionucleidos emisores  $\beta$  puros y  $\alpha$  con emisiones  $\gamma$  de baja energía, requiriendo para su identificación métodos radioquímicos de medida más complejos y económicamente más costosos. La asignación de actividad a dichos radionucleidos se realiza habitualmente mediante la utilización de factores de escala, que correlacionan la actividad de radionucleidos de fácil medida, radionucleidos llave como son el  $^{60}\text{Co}$  y  $^{137}\text{Cs}$ , con aquellos de difícil medida.

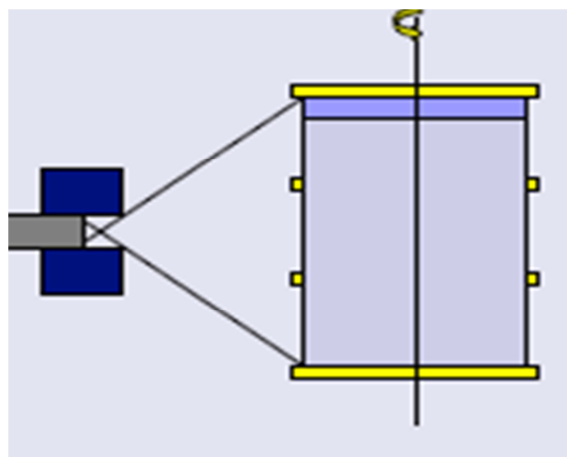


Figura 9. Sistema de exploración integral.

En el caso concreto de los materiales residuales caracterizados en el presente trabajo de investigación, todos son procedentes de la Parcela J, zona en la que se han realizado trabajos de rehabilitación y presentan una contaminación de tipo residual por  $^{137}\text{Cs}$  emisor  $\beta/\gamma$  y  $^{90}\text{Sr}$  emisor  $\beta$  puro.

Los materiales utilizados en este trabajo de investigación fueron los siguientes:

- Fuentes de verificación y patrones para la puesta a punto del contador proporcional MPC-9604 y para la caracterización de bidones mediante espectrometría  $\gamma$  *in situ* con ISOCS.
- Bidones de acero inoxidable de 0,22 m<sup>3</sup> y material para la matriz de los mismos. Además de materiales residuales y muestras tomadas en sondeos para la caracterización de la zona de "La Lenteja". El volumen de materiales

residuales que se ha manejado para la realización de este trabajo ha sido del orden de 3 m<sup>3</sup>.

- Material de laboratorio para el acondicionamiento de muestras.

En una primera etapa se realizó la puesta a punto del contador proporcional MPC-9604 que requirió la realización de una serie de estudios para evaluar el potencial adecuado de trabajo. Los estudios efectuados fueron los siguientes:

- Determinación de las curvas características.
- Determinación de eficiencias y fondos.
- Determinación del *Spillover*.
- Determinación de las figuras de mérito.
- Determinación de factores de autoabsorción.

Una vez determinado el potencial óptimo de trabajo del contador proporcional MPC-9604, se determinaron con él los índices de actividad  $\alpha$  y  $\beta$  total de las muestras tomadas en la zona de "La Lenteja".

Por otra parte, mediante el detector HPGe se determinó la actividad de bultos por espectrometría  $\gamma$  *in situ* realizando la calibración en eficiencia con ISOCS. Los bultos contenían materiales residuales generados en procesos de rehabilitación y fueron caracterizados con el objeto de proceder a su desclasificación en caso de cumplirse que sus niveles de actividad fuesen inferiores a los niveles de desclasificación (ND). Con el objeto de establecer una metodología idónea para sacar fuera del control regulador todos aquellos materiales cuyos niveles de actividad fuesen inferiores a los ND y además se cumpliese que la actividad mínima detectable (AMD) fuese inferior al 50 % del valor del ND, se realizaron una serie de estudios de investigación para ver la influencia de diferentes variables. Entre las variables estudiadas se encuentran las siguientes:

- Distancia bulto-detector.
- Colimadores y absorbente.
- Composición de la matriz.
- Densidad de la matriz.

Los bultos con materiales residuales de acuerdo con su tipología se clasificaron en bultos homogéneos y bultos heterogéneos, y se caracterizaron mediante espectrometría  $\gamma$  en estático y en dinámico con rotación uniforme del bulto, haciendo uso de la eficiencia determinada con ISOCS.

Para el caso concreto presentado en este trabajo de investigación, la concentración de actividad del <sup>137</sup>Cs se ha determinado mediante espectrometría  $\gamma$  no destructiva con detector de HPGe, aplicada a una geometría tipo bidón y haciendo uso del software ISOCS de Canberra para la calibración en eficiencias. La estimación de la concentración de actividad del <sup>90</sup>Sr se ha realizado mediante la concentración de <sup>137</sup>Cs evaluada por espectrometría  $\gamma$  con ISOCS conjuntamente con el índice de actividad  $\beta$  total determinado con el contador

proporcional de flujo continuo de gas de bajo fondo, marca Protean, modelo MPC-9604, cuya puesta a punto ha sido uno de los objetivos de este trabajo.

Finalmente los resultados obtenidos en los diferentes ensayos realizados haciendo uso del contador proporcional MPC-9604 y de la técnica de espectrometría  $\gamma$  *in situ* con ISOCS, fueron validados con los resultados remitidos por otros laboratorios del CIEMAT.



### 3 Procedimiento experimental

---

En este apartado se describen los materiales y patrones que se han utilizado en la realización de este trabajo así como los equipos y detectores de radiación y los distintos tipos de ensayo realizados. Además, las técnicas y desarrollos que se muestran en este trabajo de investigación se emplean en el Proyecto PIMIC del CIEMAT, siguiendo el Plan de Control de Materiales Desclasificables [48].

*Materiales y patrones:* entre los materiales utilizados se encuentran los materiales de laboratorio para el acondicionamiento de las muestras tomadas en sondeos y utilizadas para la caracterización de la zona de "La Lenteja", los bidones acondicionados y utilizados para la determinación de la eficiencia mediante el software ISOCS y los patrones que se han utilizado para la validación de los diferentes ensayos realizados.

*Equipos de medida:* los equipos de medida que se han utilizado han sido los siguientes:

- Contador proporcional de flujo continuo de gas de bajo fondo radiactivo, marca Protean, modelo MPC-9604, para el que ha sido necesario realizar una puesta a punto debido a su reciente adquisición.
- Espectrómetro  $\gamma$  portátil de HPGe de alta resolución de Canberra.
- Espectrómetro  $\gamma$  de HPGe de alta resolución de Canberra para la realización de espectrometría  $\gamma$  segmentada (SGS).

*Tipos de ensayo:* los ensayos que se han llevado a cabo han sido los siguientes:

- Puesta a punto del contador proporcional MPC-9604:
  - ✓ Determinación de las curvas características.
  - ✓ Determinación de eficiencias y fondos.
  - ✓ Determinación de *spillover*.
  - ✓ Determinación de las figuras de mérito.
  - ✓ Factores de autoabsorción.
- Determinación de los índices de actividad  $\alpha$  y  $\beta$  total.
- Determinación de la actividad de bultos homogéneos por espectrometría  $\gamma$  con ISOCS.
- Determinación de la actividad de bultos heterogéneos por espectrometría  $\gamma$  con ISOCS.



## 3.1 Materiales y patrones

En este apartado se recogen los patrones, material y muestras utilizadas en este trabajo de investigación. Los materiales base que se han empleado en este estudio son principalmente materiales residuales de naturaleza variable, generados en las diferentes obras acometidas en el Proyecto PIMIC-R y contenidos en bidones de 0,22 m<sup>3</sup>.

### 3.1.1 Patrones

Los patrones y fuentes de verificación utilizados para la puesta a punto del contador proporcional, fueron preparados por el Laboratorio de Metrología de Radiaciones Ionizantes (LMRI) <sup>1</sup> del CIEMAT y por el Laboratorio de Análisis y Caracterización de Residuos:

- Dos patrones de <sup>137</sup>Cs con una actividad de 174,5 ± 7,2 y 522 ± 21 Bq respectivamente con fecha de referencia 07-07-2014.
- Una fuente  $\alpha$  de <sup>241</sup>Am con una actividad de 453 ± 23 Bq con fecha de referencia 01-06-1992.
- Una fuente  $\beta$  de <sup>90</sup>Sr/<sup>90</sup>Y con una actividad de 197,7 ± 9,9 Bq con fecha de referencia 30-06-1992.

Las fuentes fueron preparadas por evaporación a sequedad sobre una plancheta de acero inoxidable de 50 mm de diámetro y 5 mm de profundidad (Figura 10). En el caso de los patrones de <sup>137</sup>Cs las planchetas fueron metalizadas interiormente por electrólisis con un recubrimiento de Au de 1  $\mu$ m de espesor. El peso final del residuo seco depositado en las planchetas fue despreciable.



Figura 10. Plancheta ranurada.

Los patrones  $\gamma$  utilizados para la caracterización de bidones fueron los siguientes:

- Fuente de <sup>155</sup>Eu/<sup>22</sup>Na con una actividad de 37 ± 7,4 kBq con fecha de referencia 11-01-2008, para la verificación de la calibración en energías del detector de Ge.
- Un bidón homogéneo de 0,22 m<sup>3</sup>, con una actividad de <sup>152</sup>Eu de 51,6 ± 2,6 MBq con fecha de referencia 01-02-1989, homogéneamente distribuida e inmovilizada en cemento y densidad de 1,91 g·cm<sup>-3</sup>.
- Fuente de referencia de <sup>152</sup>Eu. Fuente cilíndrica formada por un tubo de PVC de 96 cm de largo y 3,2 cm de diámetro, relleno con celulosa donde se depositó una disolución de referencia de <sup>152</sup>Eu, con una actividad de 22,7 ± 0,9 MBq a fecha 22-06-1999, siendo las dimensiones de la parte activa de la fuente de 64 cm de largo y 2,5 cm de diámetro.

<sup>1</sup> Laboratorio de referencia nacional respecto a los patrones de radiaciones ionizantes.

- Tres viales cilíndricos de referencia de  $^{152}\text{Eu}$ , formados por tres tubos de PVC de 10 cm de largo y 3,2 cm de diámetro, rellenos con celulosa en los que se depositó una disolución de referencia de  $^{152}\text{Eu}$ , con una actividad total de  $17,2 \pm 1,5$  MBq con fecha de referencia 18-05-2012, siendo las dimensiones de la parte activa de los viales de 6 cm de largo y 2,6 cm de diámetro.
- Cinco fuentes certificadas conteniendo una mezcla de cinco radionucleidos emisores  $\gamma$ :  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{241}\text{Am}$  y  $^{152}\text{Eu}$  embebidas en bloques de cemento de 100, 200, 300, 400 y 500 cm<sup>3</sup> respectivamente.

### 3.1.2 Bidones

El material utilizado para la caracterización de bidones fue el siguiente:

- Bidones de 0,22 m<sup>3</sup> de acero inoxidable.
- Bidones homogéneos/heterogéneos de 0,22 m<sup>3</sup> con materiales potencialmente desclasificables de distintas densidades, generados en procesos de rehabilitación dentro del Proyecto PIMIC-R, a los que les fue aplicada la metodología desarrollada.
- Bidón a escala (bidón pequeño BP) de 0,066 m<sup>3</sup> acondicionado con muestras procedentes de la zona de La Lenteja (Parcela J).
- Bidones de 0,22 m<sup>3</sup> de acero inoxidable, con cinco tubos verticales huecos posicionados a distintas distancias radiales para ubicar la fuente.
- Bidón homogéneo conteniendo RBMA procedente de una C.N.
- Material para las matrices de los bidones: arlita y arena de río.

### 3.1.3 Material de laboratorio

El material utilizado para el acondicionamiento de las muestras en el laboratorio fue el siguiente:

- Molino de bolas marca Retsch, modelo S100.
- Balanza marca Sartorius, modelo AX 124.
- Balanza marca Sartorius, modelo CP 3202S.
- Estufa marca Selecta, modelo 2001244.
- Planchetas de acero inoxidable adaptadas al diámetro útil del detector (50 mm de diámetro y 5 mm de profundidad) con siete ranuras.
- Gas de análisis tipo P-10 (Air-Liquide).
- Nitrógeno líquido (Air-Liquide).

Las muestras utilizadas en la puesta a punto del contador proporcional de flujo continuo de gas MPC-9604, fueron preparadas sobre planchetas de acero inoxidable adaptadas al diámetro útil del detector con siete ranuras concéntricas. Las ranuras de las

planchetas permiten un reparto homogéneo del residuo cuando se evapora a sequedad una mezcla en las mismas.

### 3.1.4 Muestras

Las muestras analizadas fueron muestras procedentes de sondeos, realizados en la zona de trabajo utilizada para la realización de este trabajo de investigación y perteneciente a PIMIC-R. Las muestras una vez tomadas, fueron llevadas al Laboratorio de Preparación de Muestras (LPM) donde fueron secadas en estufa a 85 °C hasta peso constante (aprox. 24 h). Posteriormente se introdujeron en el molino de bolas marca Retsch, modelo S100, donde fueron molturadas a 450 rpm. El material procesado tiene una distribución de tamaño de partícula inferior a 20  $\mu\text{m}$ . Las alícuotas de las muestras se obtuvieron mediante una balanza marca Sartorius, modelo AX 124. Los tratamientos térmicos a los que se sometieron las muestras se realizaron con una estufa marca Selecta, modelo 2001244. Finalmente se determinaron los índices de actividad  $\alpha$  y  $\beta$  total de las muestras mediante el contador proporcional MPC-9604 que utiliza como gas de análisis, el gas P-10 de Air Liquide.

El volumen de materiales residuales que se ha manejado para la realización de este trabajo de investigación ha sido del orden de 3 m<sup>3</sup>, lo que ha supuesto una masa total de materiales de 2.835 kg.

## 3.2 Equipos y detectores de radiación

A continuación se describen los equipos empleados para la determinación de los índices de actividad  $\alpha$  y  $\beta$  total y para la determinación de la concentración de actividad de radionucleidos emisores  $\gamma$ . Los equipos utilizados fueron los siguientes:

- Contador proporcional de flujo continuo de gas de bajo fondo radiactivo, marca Protean, modelo MPC-9604.
- Espectrómetro  $\gamma$  portátil de HPGe de alta resolución marca Canberra.
- Espectrómetro  $\gamma$  de HPGe de alta resolución marca Canberra para la realización de espectrometría  $\gamma$  segmentada (SGS).

### 3.2.1 Contador proporcional MPC-9604

Uno de los objetivos de este trabajo de investigación es la puesta a punto de un contador proporcional de flujo continuo de gas, el equipo seleccionado fue un MPC-9604 de la marca Protean (Figura 11). El equipo se ha empleado en la determinación de los índices de actividad  $\alpha$  y  $\beta$  total a partir de matrices (materiales residuales procedentes de zonas de rehabilitación) que contenían o pudieran contener emisores de ambos tipos.

La Figura 12 muestra un esquema de las conexiones del MPC-9604. Este equipo utiliza una conexión de desenganche rápido para el suministro de gas P-10, en la parte interna de esta conexión tiene un filtro de partículas de 0,2  $\mu\text{m}$  reemplazable. Dicho filtro tiene por misión evitar que el polvo y otros materiales puedan entrar en la unidad y causar daños.

El caudal nominal de gas óptimo recomendado en las especificaciones del fabricante para el MPC-9604 es de  $60 \text{ cm}^3 \cdot \text{min}^{-1}$  [83]. Además, el equipo dispone de un medidor instalado en el frontal que permite el control visual del flujo de gas aportado.

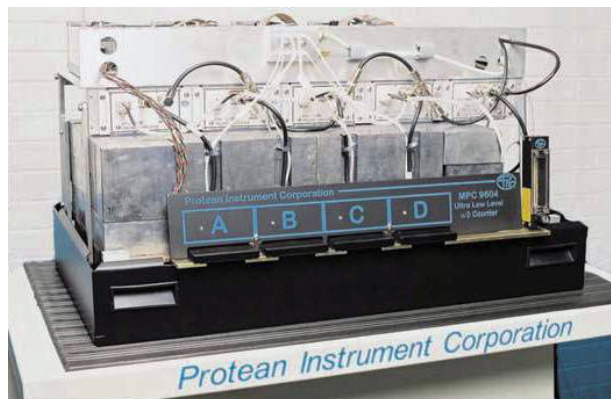


Figura 11. Contador Proporcional MPC-9604.

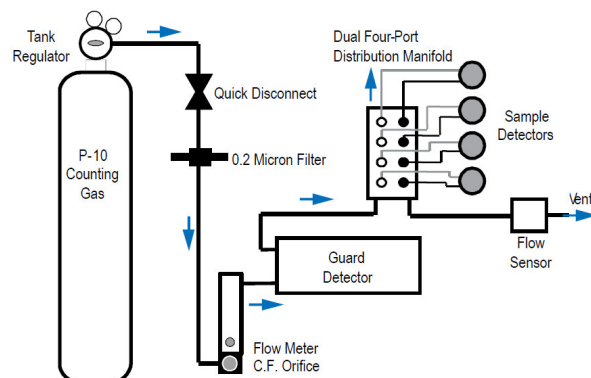


Figura 12. Esquema del sistema de flujo del gas P-10 en el MPC-9604.

El gas fluye a través de un detector de guarda y luego pasa a un colector doble de cuatro puertos, que alimenta en paralelo a los cuatro detectores y además controla el flujo de gas a medida que sale de los detectores de muestras. El hecho de alimentarse de forma paralela supone una ventaja frente a otros sistemas, ya que cuando es necesaria la reparación de algún detector, con un suministro en paralelo del flujo de gas sólo es cuestión de determinar qué detector está causando el problema y aislarlo mediante el cierre de sus líneas de gas. Las líneas de entrada y salida de cada detector disponen de dispositivos de cierre simples, que son accesibles desde la parte frontal del equipo. Los detectores se pueden quitar fácilmente a través del acceso frontal, se pueden reparar y/o reemplazarse, así como esperar hasta el momento más conveniente para su realización. Sin embargo, los sistemas que utilizan alimentación de flujo de gas en serie, generalmente pierden además del uso del detector dañado, todos los detectores que estén a continuación de éste. Con esquemas de alimentación en serie, es casi imposible reemplazar o reparar detectores defectuosos sin desactivar temporalmente todos los detectores de la unidad.

En el caso del MPC-9604, utiliza ventanas individuales ultra-delgadas ( $100 \mu\text{g} \cdot \text{cm}^{-2}$ ) que optimizan el rendimiento del recuento y son fácilmente reemplazables desde el panel frontal.

La puesta a punto del MPC-9604 es imprescindible para su correcto funcionamiento, y requiere el estudio y establecimiento de las condiciones idóneas para la realización de las medidas. Por esta razón se determinan las curvas características, eficiencias y fondos, *spillover*, las figuras de mérito de todos sus detectores y los factores de autoabsorción con el objeto de establecer el voltaje óptimo de recuento [84]. Los datos experimentales obtenidos se discuten en detalle en el punto 4.1.

### 3.2.2 Detector portátil de Ge

En este trabajo de investigación se ha utilizado un detector portátil de Ge marca Canberra, tipo BEGE, modelo BE38030-7935SL-7-RDC4, con una eficiencia intrínseca para el  $^{60}\text{Co}$  del 34 % y una resolución de 2,1 keV para 1333 keV y 0,75 keV para 122 keV (Figura 13).

El detector portátil fue caracterizado por Canberra Industries de forma individualizada con el modelo ISOXCAL para el empleo del software ISOCS (In Situ Object Counting System) [4], que permite la calibración matemática en eficiencias haciendo uso de un código de Monte Carlo MNCP [85], y que no requiere la utilización de fuentes de calibrado. El uso de este código ha sido verificado para la calibración en eficiencias de detectores de Ge [86, 87].

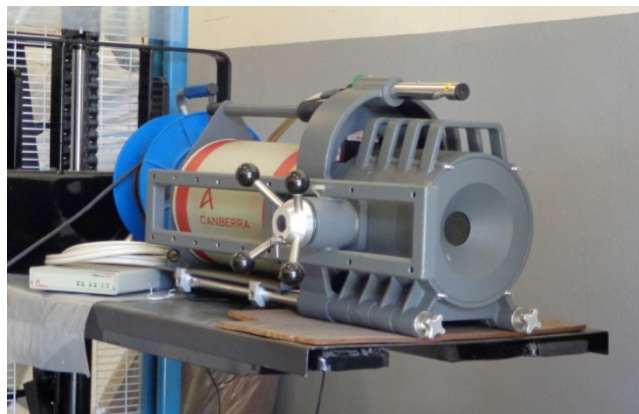


Figura 13. Detector portátil de Ge con colimador de Pb de 50 mm de espesor y 90° de apertura.

El software de calibración de ISOCS es un modelo matemático que tiene diferentes opciones que pueden simular una amplia variedad de muestras con geometrías comunes [88]. Cada una de las opciones permite la introducción de los parámetros adecuados y necesarios para el cálculo de eficiencias. Además el software contempla la atenuación debida a absorbentes dentro de la fuente y también debido al espacio existente entre la fuente y el detector. Para determinar la precisión de las calibraciones en eficiencia de ISOCS, se han diseñado y realizado un gran número de pruebas de validación [89, 90].

Como módulo analizador digital de espectros se utilizó el modelo DSA-1000 [91] y el Model 1300 InSpector 2000 [92], con procesador digital de la señal, módulo de alta tensión hasta  $\pm 5000$  V y estabilizador digital de pulsos (ambos de Canberra).

El detector dispone de dos colimadores de tipo cilíndrico con unos ángulos de apertura de 90 ° y 30 ° respectivamente, con blindajes de Pb de 50 y 25 mm cada uno de ellos. A su vez el detector está rodeado por un blindaje de Pb con un espesor de 50 mm.

El software utilizado para la medida y cuantificación de las muestras fue Genie-2000 Gamma Acquisition & Analysis de la marca Canberra que será detallado en el siguiente apartado.

La caracterización de bultos mediante espectrometría y con un detector de Ge, requiere una calibración previa del detector. Por una parte la calibración en energías necesaria para identificar los emisores y presentes y por otra la calibración en eficiencias con la que se cuantifica su actividad. La calibración en energías se realizó con una fuente de verificación de  $^{155}\text{Eu}/^{22}\text{Na}$  con una actividad de 37 kBq/37 kBq con fecha de referencia 11-

01-2008, que relaciona la energía de los fotones incidentes absorbidos por el detector (como altura del impulso eléctrico) con el número de canal en el que aparece el pico de absorción total o fotopico.

La calibración en eficiencias en este trabajo de investigación como se dijo anteriormente, se realiza mediante un método de cálculo numérico. Para poder aplicar métodos de cálculo numérico, la respuesta del detector frente a una serie de fuentes de radiación  $\gamma$  situadas en su entorno, ha tenido que ser valorada mediante simulación con códigos matemáticos de Monte Carlo. Este proceso lo realiza la compañía fabricante del equipo y los detectores suministrados con este tipo de información se dice que están caracterizados.

### 3.2.2.1 Genie-2000

El sistema Genie-2000 es un conjunto de aplicaciones que facilitan la adquisición y tratamiento matemático de diferentes tipos de espectro basado en el entorno gráfico Windows [93, 94]. Genie-2000 dispone de un entorno de trabajo en el cual se puede realizar la adquisición simultánea de varios detectores. El análisis de espectros se realiza tanto de forma interactiva como mediante secuencias preestablecidas por el usuario.

La sistemática para la realización de las determinaciones de actividad de los radionucleidos  $\gamma$  contempla los siguientes pasos:

- Localización de picos.
- Cálculo de área.
- Sustracción del fondo.
- Corrección por eficiencia.
- Identificación de radionucleidos.
- Cálculo de la actividad.

*Localización de picos:* El primer paso en el análisis de un espectro es la localización de los correspondientes fotopicos. El programa Genie-2000 proporciona cuatro algoritmos diferentes para realizar este proceso. Los métodos de derivación y entre ellos el de la segunda derivada, son los procedimientos más adecuados cuando no se dispone a priori de información sobre radionucleidos presentes en la muestra. El programa Genie-2000 emplea el algoritmo desarrollado por Mariscotti [95] y modificado posteriormente en el programa SAMPO80 [96]. Los fotopicos del espectro se aproximan a gaussianas superpuestas a una línea base. La determinación de la posición de cada pico o centroide se realiza a partir del cálculo de la segunda derivada del espectro. Los puntos en los que esta función alcanza sus valores mínimos, coinciden con los máximos de la función original o centroides de los fotopicos.

*Cálculo del área:* Una vez establecido el centroide, la anchura del pico se determina por interpolación en la curva de calibración que relaciona la variación de la anchura de pico con la energía. La determinación del área se lleva a cabo después de establecer los límites del fotopico. Para ello se analizan un número máximo de canales a ambos lados del

centroide, localizando los puntos en los que la función alcanza un mínimo. Dichos puntos determinan la región del espectro en la que se encuentra el fotopico.

*Sustracción del fondo:* Cuando los radionucleidos de interés son de origen natural, es preciso considerar la contribución debida al fondo ambiental en el cálculo del área del fotopico por lo que es necesario realizar la resta del fondo ambiental existente.

*Corrección por eficiencia de recuento:* La curva de eficiencia se determina con un modelo matemático mediante el software ISOCS, que se aplica en los diferentes estudios analizados como se verá más adelante.

Las condiciones de medida utilizadas para la generación de las curvas de eficiencia fueron las siguientes:

- Geometrías seleccionadas: *Simple Cylinder* para bidones con distribución de actividad homogénea y *Complex Pipe* para bidones con distribución de actividad heterogénea.
- Colimadores con ángulos de apertura de 90 ° y 30 °, con blindaje de Pb de 50 y 25 mm.
- Dimensiones del bidón: volumen 0,22 m<sup>3</sup>, altura 88 cm y diámetro 57 cm.
- Distancia bidón-detector variable. El detector está siempre posicionado a mitad de altura del bidón.
- Densidad variable.
- Composición variable.
- Estático y dinámico: se realizaron ensayos con el bidón estático y con el bidón posicionado en una plataforma de giro, rotando con velocidad uniforme comprendida entre 3 y 7 rpm.
- Distintas distribuciones de la actividad dentro del bidón.
- Tiempo de medida: variable.

*La identificación de radionucleidos:* Una vez localizados los fotopicos, se lleva a cabo la identificación de radionucleidos empleando librerías de análisis. El programa Genie-2000 dispone de un editor de librerías que permite la creación de ficheros en los que se introducen las características de los radionucleidos considerados: líneas de emisión, intensidad de las mismas y periodos de semidesintegración.

*Cálculo de la actividad:* El cálculo de la actividad correspondiente a cada una de las líneas energéticas identificadas en el espectro, se realiza a partir del área del fotopico empleando la expresión 4.

$$A = \frac{S}{T \cdot V \cdot \gamma \cdot \varepsilon'(E)} \quad <4>$$

donde,

$A$  es la actividad por unidad de masa o volumen;

$S$  es el área neta del fotopico;

$V$  es el tamaño de la muestra (masa o volumen);

$\varepsilon'(E)$  es la eficiencia corregida por la atenuación para una energía ( $E$ ) en tanto por uno;

$$\varepsilon'(E) = \varepsilon \cdot e^{-\mu(E)\rho t} \quad <5>$$

donde,

$\varepsilon(E)$  es la eficiencia sin corregir para una energía ( $E$ );

$\mu(E)$  es la atenuación másica, en unidad de área por gramo;

$\rho t$  es la masa media por unidad de área, en gramos

y probabilidad de emisión de la línea de interés del espectro en tanto por ciento;

$T$  tiempo de recuento en segundos.

La incertidumbre expandida de la actividad  $\sigma_A$ , viene dada por la expresión 6.

$$\sigma_A = \sqrt{\left(\frac{\sigma_R}{100}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_S}{S}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_V}{V}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{\varepsilon'}}{\varepsilon'}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_Y}{Y}\right)^2} \quad <6>$$

donde,

$\sigma_R$  es la incertidumbre aleatoria definida por el usuario en %;

$\sigma_S$  es la incertidumbre del pico de área neta  $S$ ;

$\sigma_V$  es la incertidumbre del tamaño de la muestra (masa o volumen);

$\sigma_{\varepsilon'}$  es la incertidumbre de la eficiencia efectiva, la cual es definida como

$$\sigma_{\varepsilon'} = \varepsilon' \cdot \sqrt{\left(\frac{\sigma_{\varepsilon}}{\varepsilon}\right)^2 + \left(\rho t \cdot \sigma_{\mu(E)}\right)^2 + \left(\mu(E) \cdot \sigma_{\rho t}\right)^2} \quad <7>$$

donde,

$\sigma_{\varepsilon}$  es la incertidumbre de la eficiencia no corregida;



$\sigma_{\mu(E)}$  es la incertidumbre de la atenuación másica;

$\sigma_y$  es la incertidumbre de la probabilidad de emisión de la línea de interés del espectro;

$\sigma_{pt}$  es la incertidumbre de la masa media por unidad de área;

y el resto de los términos han sido definidos anteriormente.

El cálculo de la actividad mínima detectable (AMD)<sup>1</sup>, se realiza empleando el criterio de Currie [97]. Dicho criterio define un límite de detección ( $L_D$ ), que corresponde a la mínima señal neta que puede ser cuantificada con un nivel de confianza prefijado.

$$L_D = L_C + k_\beta \sigma_D \quad <8>$$

donde,

$L_C$ : es el nivel crítico y viene definido como:

$$L_C = k_\alpha \sigma_0 \quad <9>$$

donde,

$k_\alpha$  y  $k_\beta$ : son las abscisas de la distribución normal correspondientes a los niveles de probabilidad  $1-\alpha$  y  $1-\beta$  (niveles de confianza);

$\sigma_0$ : es la desviación estándar de la señal neta observada cuando  $\mu_S = 0$  siendo  $\mu_S$  la señal neta auténtica;

$\sigma_D$ : es la desviación estándar de la señal neta observada cuando su valor real  $\mu_S = L_D$ .

Los tiempos de los ensayos se optimizaron al objeto de que se cumpliera que la actividad mínima detectable (AMD) fuese igual o inferior al 50% del nivel de desclasificación, con el fin de poder aplicar esta técnica al proceso de desclasificación de materiales.

En la Figura 14 se recoge a título de ejemplo un espectro correspondiente a un bulto heterogéneo con matriz de arlita conteniendo una fuente de  $^{152}\text{Eu}$ .

---

<sup>1</sup>Nivel de actividad verdadera que puede esperarse que una instrumentación y técnica de medida específica detecte un 95 % de las veces.

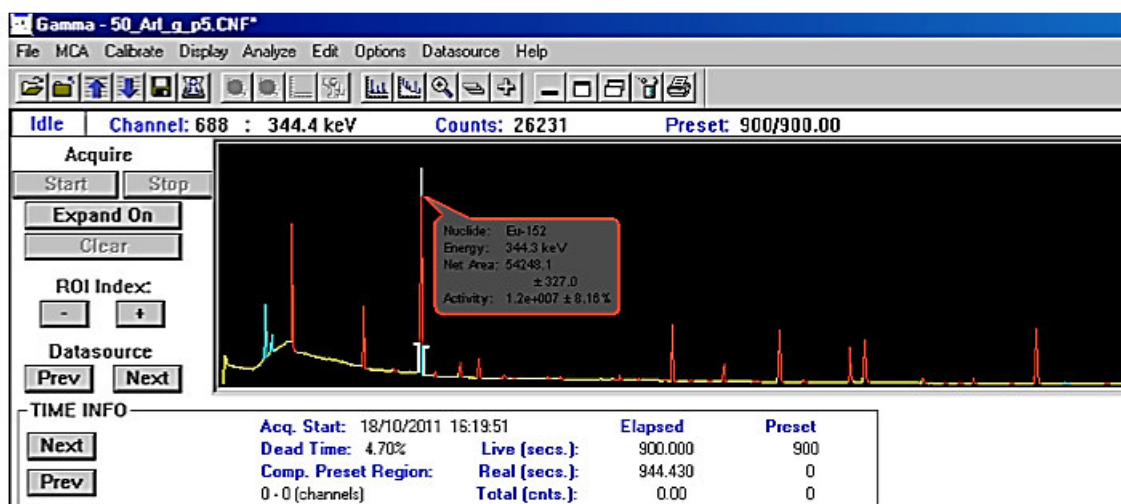


Figura 14. Espectro correspondiente a la barra de  $^{152}\text{Eu}$  contenida en un bidón con matriz de arlita.

### 3.2.2.2 Geometry Composer-ISOCS

El programa *Geometry Composer*-ISOCS permite generar las geometrías específicas que se adapten a necesidades de medida de diferentes tipos de geometrías en espectrometría  $\gamma$ . Básicamente el programa se ha diseñado para medir contenedores y objetos de formas anómalas. En la Figura 15 se presenta un ejemplo de geometría que puede adoptar el programa *Geometry Composer*.

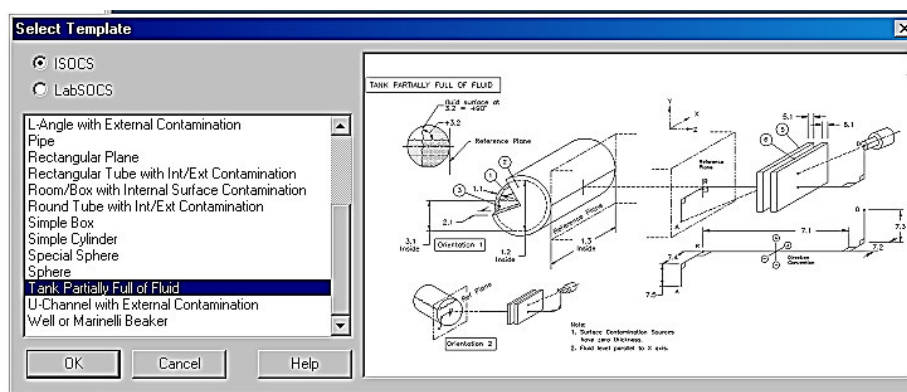


Figura 15. Ejemplo de geometría que permite adoptar el programa *Geometry Composer*.

El programa se basa en el empleo de detectores caracterizados matemáticamente mediante MNCP, dotados del blindaje apropiado, un analizador con su electrónica asociada y el programa Genie-2000.

La muestra a medir se asocia a un modelo genérico especificándose:

- Dimensiones de la muestra, distancia al detector, etc.
- Características químicas de la muestra, tipo de material, densidad, etc.
- Sistema de blindaje asociado al detector, colimador, etc.

Posteriormente se genera una curva de calibración apropiada a la medida y finalmente haciendo uso de la curva de calibración generada se analiza la muestra.

Las geometrías seleccionadas en este trabajo han sido las siguientes: *Simple Cylinder* para bidones con distribución de actividad homogénea y *Complex Pipe* para bidones con distribución de actividad heterogénea.

### 3.2.2.3 Plataforma de giro

La plataforma de giro en la que se posicionan los bidones para su caracterización mediante el detector portátil de Ge ha sido fabricada por Mecatrans Ingeniería de Servoaccionamiento SL, con referencia TEC-ABR-2008 (Figura 16).

Se trata de un sistema de posicionamiento de bultos frente al detector TEC60/100.

- Admite bidones de hasta 1000 kg de peso.
- Precisión  $60/2\pi$ .
- Dispone de centradores para ayudar en el posicionamiento de los bidones.
- Velocidad de giro variable.
- Motor de corriente alterna y cojinetes axiales de gran resistencia.
- Encoder y programa de manejo desde un PC.
- Cubierta de fácil descontaminación y sencilla de reemplazar en caso de necesidad.



Figura 16. Bidón sobre plataforma de giro.

### 3.2.3 Detector de Ge para espectrometría gamma segmentada (SGS)

El sistema SGS que se ha utilizado (Figura 17), consta de:

- Unidad Mecánica: que proporciona las capacidades de posicionamiento relativas entre el detector y/o el bulto, así como las herramientas de sustentación del bulto. Esta unidad mecánica tiene una plataforma giratoria para acomodar el bulto de residuos sobre uñas en posición relativa de  $120^\circ$ , con diámetro ajustable para adaptarse a diferentes tamaños de bulto. La plataforma giratoria proporciona la rotación a velocidad variable entre 0,1 y 10 rpm (habitualmente 7-8 rpm). El programa DACAR V1.0 [95] controla de manera independiente los movimientos del bulto respecto al detector desde el sistema de control de procesos.

Sistema de detección de la radiación: sistema de espectrometría y de alta resolución. Detector de HPGe marca Canberra, con una eficiencia relativa a un detector de NaI(Tl) del 20 %, con una resolución nominal de 0,846 keV para la energía de 122 keV del  $^{57}\text{Co}$  y de 1,74 keV para la energía de emisión del  $^{60}\text{Co}$  de 1332 keV. El colimador está fabricado en Pb de 50 mm de espesor y con configuraciones diversas. Colimadores de

configuración cilíndrica de 25 mm y de 50 mm de diámetro. Colimadores de configuración rectangular. De este tipo se dispone de colimador de 50 mm Ø x 10 mm, 50 mm Ø x 20 mm y 50 mm Ø x 40 mm. La disposición de la dimensión menor (10, 20 y 40 mm) puede ser horizontal, denominándose los colimadores 10H, 20H y 40H respectivamente o en disposición vertical denominándose entonces 10V, 20V y 40V respectivamente. El blindaje ambiental está fabricado en Pb

- La adquisición y el análisis de los espectros se llevan a cabo mediante el software de Canberra Genie 2000 [93, 94]. Como módulo analizador digital de espectros utiliza el modelo DSA-1000 [91].
- Unidades adicionales: en la que se puede incluir equipos como la balanza de bultos, unidades de carga del bulto en la unidad mecánica etc.



Figura 17. Sistema SGS ubicado en IR-17.

### 3.3 Ensayos

#### 3.3.1 Puesta a punto del contador proporcional MPC-9604 de Protean

La puesta a punto del contador proporcional de flujo continuo de gas MPC-9604, requiere la determinación de su voltaje óptimo de recuento, que se define como aquel que proporciona la mejor figura de mérito [98]. La figura de mérito ( $FM$ ) se define como:

$$FM = \frac{ef^2}{f} \quad <10>$$

donde  $ef$  es la eficiencia de recuento expresada en tanto por ciento y  $f$  son las cuentas totales del fondo en cuentas por minuto.

Los estudios de investigación que se realizaron para determinar el voltaje óptimo de trabajo, fueron los siguientes:

- Determinación de las curvas características.
- Determinación de eficiencias y fondos.
- Determinación del *spillover*.
- Determinación de las figuras de mérito.
- Determinación del factor de autoabsorción  $f_a$ .

La eficiencia y el *spillover* del contador proporcional, se determinaron utilizando los patrones de  $^{241}\text{Am}$  y  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  y los fondos se determinaron utilizando planchetas de acero inoxidable, limpias y vacías para cada uno de los detectores.

### 3.3.1.1 Determinación de las curvas características

La curva característica consiste en una representación gráfica de los impulsos detectados en cada una de las ventanas  $\alpha$  y  $\beta$  para cada patrón frente a los diferentes valores de potencial y permite definir el intervalo de potenciales óptimo de trabajo.

Las curvas características se obtuvieron a partir de 40 medidas de 5 min cada una para cada potencial, comenzando en 705 V y finalizando en 1875 V con incrementos de 30 V.

### 3.3.1.2 Determinación de eficiencias y fondos

La eficiencia<sup>1</sup> para el modo de recuento  $\alpha$  se determinó mediante el patrón  $\alpha$  de  $^{241}\text{Am}$  en cada detector, una vez definido el intervalo de potenciales óptimo de trabajo mediante las curvas características. Para ello se realizaron 16 medidas de 5 min cada una, partiendo de un potencial de 1275 hasta 1725 V con incrementos de 30 V. Dichas medidas se repitieron para los cuatro detectores del equipo. La ecuación que se aplicó fue la siguiente:

$$ef_{\alpha} = \frac{c_{v\alpha} \cdot 100}{A_{\alpha} \cdot 60 \cdot t} \quad <11>$$

donde,

$ef_{\alpha}$  es la eficiencia  $\alpha$ , en tanto por ciento;

$c_{v\alpha}$  son las cuentas en la ventana  $\alpha$  en cuentas por minuto;

$A_{\alpha}$  es la actividad, en Bequerelios;

$t$  es el tiempo de medida, en minutos.

La eficiencia para el modo de recuento  $\beta$  se determinó con el patrón  $\beta$  de  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  en cada detector de forma análoga a la determinada en el modo de recuento  $\alpha$ . Se realizaron 16 medidas de 5 min cada una, partiendo de un potencial de 1275 hasta 1725 V con incrementos de 30 V. Dichas medidas se repitieron para los cuatro detectores del equipo. La ecuación que se aplicó fue la siguiente:

$$ef_{\beta} = \frac{c_{v\beta} \cdot 100}{A_{\beta} \cdot 60 \cdot t} \quad <12>$$

---

<sup>1</sup> La eficiencia de un contador proporcional permite conocer el rendimiento de los detectores del equipo para los dos modos de medida ( $\alpha$  y  $\beta$ ).

donde,

$ef_{\beta}$  es la eficiencia  $\beta$ , en tanto por ciento;

$c_{v\beta}$  son las cuentas en la ventana  $\beta$  en cuentas por minuto;

$A_{\beta}$  es la actividad de la fuente, en Bequerelios;

$t$  es el tiempo de medida, en minutos.

En el caso de los fondos, el detector está rodeado por un blindaje de Pb para disminuir el fondo ocasionado por la radiación cósmica y la del  $^{40}\text{K}$  de los materiales de construcción. Asimismo, el equipo de medida tiene un fondo debido a la presencia del gas radón proveniente de las series radiactivas del  $^{238}\text{U}$  y  $^{232}\text{Th}$ , que se debe principalmente a los materiales de construcción, que no es eliminado por el blindaje y que debe ser corregido en la medida de las muestras. Además, con la ayuda de un detector de guarda se elimina la radiación cósmica de mayor energía.

Los fondos se determinaron midiendo planchetas de acero inoxidable, limpias y vacías en cada uno de los detectores. Para la determinación de los valores de fondo del equipo se realizaron diferentes medidas en el intervalo de potenciales comprendido entre 1275 y 1725 V siguiendo la misma metodología anterior, es decir, intervalos de paso de potencial 30 V y tiempo de medida de 1000 min para cada uno de los potenciales seleccionados.

### 3.3.1.3 Determinación del *spillover*

El contador proporcional MPC-9604 realiza las medidas en modo simultáneo, por lo que va provisto de dos ventanas, una  $\alpha$  y otra  $\beta$ . Mediante el uso de discriminadores con diferentes umbrales de separación de impulsos se consigue la separación de impulsos  $\alpha$  y  $\beta$ . Sin embargo, puede ocurrir que impulsos  $\alpha$  se registren en la ventana  $\beta$  y viceversa, denominándose a este fenómeno *spillover*.

Se define el *spillover* en la ventana  $\alpha$  como la fracción de partículas  $\beta$  contadas en la ventana  $\alpha$  cuando se mide un patrón  $\beta$ , y se expresa como:

$$\gamma_{\alpha} = \frac{c_{\beta(v\alpha)}}{c_{\beta(v\beta)}} \cdot 100 \quad <13>$$

donde,

$\gamma_{\alpha}$  es el *spillover* en la ventana  $\alpha$ , en tanto por ciento;

$c_{\beta(v\alpha)}$  son las cuentas del patrón  $\beta$  en la ventana  $\alpha$ , en cuentas;

$c_{\beta(v\beta)}$  son las cuentas del patrón  $\beta$  en la ventana  $\beta$ , en cuentas.

Se define el *spillover* en la ventana  $\beta$  como la fracción de partículas  $\alpha$  contadas en la ventana  $\beta$  cuando se mide un patrón  $\alpha$ , y se expresa como:

$$\gamma_{\beta} = \frac{c_{\alpha(\nu\beta)}}{c_{\alpha(\nu\alpha)}} \cdot 100 \quad <14>$$

donde,

$\gamma_{\beta}$  es el *spillover* en la ventana  $\beta$ , en tanto por ciento;

$c_{\alpha(\nu\beta)}$  son las cuentas del patrón  $\alpha$  en la ventana  $\beta$ , en cuentas;

$c_{\alpha(\nu\alpha)}$  son las cuentas del patrón  $\alpha$  en la ventana  $\alpha$ , en cuentas.

La determinación del *spillover* se realizó midiendo los patrones de  $^{241}\text{Am}$  y de  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  en los cuatro detectores. Se realizaron 40 medidas de 5 min para cada potencial, comenzando en 705 V y finalizando en 1875 V con incrementos de 30 V.

#### 3.3.1.4 Determinación de las figuras de mérito

El potencial óptimo de trabajo se define como aquel valor de voltaje que proporciona la mejor figura de mérito (*FM*). Los cuatro detectores están alimentados por una misma fuente de alta tensión, lo que implica que el voltaje no puede ser seleccionado para un único detector, sino que se ha de determinar un valor medio de los voltajes de los cuatro detectores para determinar el potencial óptimo de trabajo.

A partir de los datos experimentales de la medida de eficiencias y fondos, se determinaron las figuras de mérito para cada uno de los detectores utilizando la expresión 10. Las eficiencias fueron determinadas realizando 16 medidas de 5 min con los patrones  $\alpha$  y  $\beta$  en el intervalo comprendido entre 1275 y 1725 V, con incrementos de 30 V. Los fondos se obtuvieron midiendo planchetas de acero inoxidable limpias y vacías para los 16 potenciales definidos en el intervalo de interés (1275 -1725 V), durante 1000 min para cada potencial.

El potencial óptimo de trabajo se determinó a partir del máximo de la función de ajuste de los puntos experimentales. Como no existen en la bibliografía criterios sobre el tipo de ajuste, se utilizó un ajuste cuadrático, expresión 15, que es coherente con la tendencia de los puntos.

$$FM = a_0 + a_1 x + a_2 x^2 \quad <15>$$

#### 3.3.1.5 Determinación del factor de autoabsorción

El factor de autoabsorción  $fa$  corrige la pérdida de eficiencia que sufren tanto las partículas  $\alpha$  como las  $\beta$  al interaccionar con la materia [99], y se obtiene como la relación entre la eficiencia de las fuentes de calibración con diferentes pesos de residuo final y la de las fuentes de calibración sin autoabsorción, de acuerdo con la expresión 16.

$$fa = \frac{ef_x}{ef_0} \quad <16>$$

donde,

$ef_x$  es la eficiencia de cada uno de los puntos de la curva de autoabsorción;

$ef_0$  es la eficiencia del primer punto de la curva, permite la corrección en la medida de actividad debido a las pérdidas en el recuento de depósitos finitos.

### 3.3.2 Determinación de los índices de actividad $\alpha$ y $\beta$ total

El índice de actividad  $\alpha$  total indica la presencia de todas las emisiones  $\alpha$  existentes en la muestra referidas al patrón de  $^{241}\text{Am}$ .

El índice de actividad  $\alpha$  total se ha determinado mediante la expresión 17:

$$A = \frac{cpm_m - cpm_f}{60 \cdot ef_\alpha \cdot fa \cdot m} \quad <17>$$

donde,

$A$  es el índice de actividad  $\alpha$  total de la muestra en  $\text{Bq} \cdot \text{g}^{-1}$ ;

$cpm_m$  es la tasa de recuento de la muestra, en cuentas por minuto;

$cpm_f$  es la tasa de recuento del fondo, en cuentas por minuto;

$ef_\alpha$  es la eficiencia  $\alpha$  del detector, en tanto por uno;

$fa$  es el factor de autoabsorción correspondiente al espesor másico de la muestra;

$m$  es el peso de la muestra en gramos.

La determinación de la incertidumbre se ha realizado teniendo en cuenta la incertidumbre de la medida, la de la eficiencia y la del peso de la muestra. La incertidumbre debida a la eficiencia se estima según la expresión 18:

$$u(ef) = \sqrt{(1 / cpm_p) + u(p)^2} \quad <18>$$

donde,

$u(ef)$  es la incertidumbre de la eficiencia de recuento, en tanto por uno;

$u(p)$  es la incertidumbre del peso del patrón de calibración;

$cpm_p$  es la tasa de recuento del patrón, en cuentas por minuto.



La incertidumbre expandida de la actividad  $\alpha$  total de la muestra,  $U(A)$ , viene dada por la expresión 19:

$$U(A) = k \cdot A \cdot \sqrt{\left(\frac{1}{c}\right)^2 + \left(\frac{u(ef)}{ef}\right)^2 + \left(\frac{u(m)}{m}\right)^2} \quad <19>$$

donde,

$U(A)$  es la incertidumbre expandida asociada a la actividad de la muestra, en  $Bq \cdot g^{-1}$ ;

$k$  es el factor de cobertura;

$c$  son las cuentas de la muestra, en cuentas;

$u(m)$  es la incertidumbre del peso de la muestra;

y el resto de los términos han sido definidos anteriormente.

El cálculo de la actividad mínima detectable (AMD) se determina teniendo en cuenta el criterio de Currie [97] mediante la expresión 20:

$$AMD = \frac{3,29 \cdot \sqrt{\frac{cpm_f}{T_m} + \frac{cpm_f}{T_f}} + 2,7 \cdot \left(\frac{1}{T_m} + \frac{1}{T_f}\right)}{60 \cdot ef_{\alpha} \cdot fa \cdot m} \quad <20>$$

donde,

$AMD$  es la actividad mínima detectable  $\alpha$  de la muestra, en  $Bq \cdot g^{-1}$ ;

$T_m$  es el tiempo de medida de la muestra, en minutos;

$T_f$  es el tiempo de medida del fondo, en minutos;

y el resto de los términos han sido definidos anteriormente.

El índice de actividad  $\beta$  total indica la presencia de todas las emisiones  $\beta$  existentes en la muestra referidas al patrón de  $^{90}Sr/^{90}Y$ .

El índice de actividad  $\beta$  total se ha determinado mediante la expresión 21.

$$A = \frac{(cpm_{\beta} - cpmf_{\beta}) - \gamma(cpm_{\alpha} - cpmf_{\alpha})}{ef_{\beta} \cdot m \cdot fa \cdot 60} \quad <21>$$

donde,

$A$  es el índice de actividad  $\beta$  total de la muestra, en  $Bq \cdot g^{-1}$ ;

$cpm_{\beta}$  son las cuentas  $\beta$  por minuto, en cuentas por minuto;

$cpmf_{\beta}$  son las cuentas  $\beta$  por minuto del fondo, en cuentas por minuto;

$\gamma$  es el *spillover* de la medida  $\beta$ , en tanto por uno;

$cpm_{\alpha}$  son las cuentas  $\alpha$  por minuto, en cuentas por minuto;

$cpmf_{\alpha}$  son las cuentas  $\alpha$  por minuto del fondo, en cuentas por minuto;

$ef_{\beta}$  es la eficiencia  $\beta$ , en tanto por uno;

$m$  es el peso de la muestra, en gramos;

$fa$  es el factor de autoabsorción.

La determinación del índice de actividad  $\beta$  total también requiere del cálculo del factor de autoabsorción  $fa$ , definido en el apartado 3.3.1.5 de acuerdo con la expresión 16.

La incertidumbre expandida de la actividad  $\beta$  total [100], para un factor de cobertura  $k = 2$  se determinó mediante la expresión 22.

$$U(A) = \frac{k \cdot \sqrt{u(cpm_{\beta})^2 + u(cpmf_{\beta})^2 + \gamma^2 [u(cpm_{\alpha})^2 + u(cpmf_{\alpha})^2] + [u(m)/m]^2 + [A \cdot m \cdot fa \cdot u(ef)]^2}}{60 \cdot ef_{\beta} \cdot fa \cdot m} \quad <22>$$

donde,

$U(A)$  es la incertidumbre de recuento en la determinación del índice de actividad  $\beta$  total, en  $Bq \cdot g^{-1}$ ;

$u(cpm_{\beta})$  es la incertidumbre de las cuentas  $\beta$  por minuto, en cuentas por minuto;

$u(cpmf_{\beta})$  es la incertidumbre de las cuentas  $\beta$  por minuto del fondo, en cuentas por minuto;

$\gamma$  es el *spillover* de la medida  $\beta$ ;

$u(cpm_{\alpha})$  es la incertidumbre de las cuentas  $\alpha$  por minuto, en cuentas por minuto;

$u(cpmf_{\alpha})$  es la incertidumbre de las cuentas  $\alpha$  por minuto del fondo, en cuentas por minuto;

y el resto de los términos han sido definidos anteriormente.

El cálculo de la actividad mínima detectable se determinó teniendo en cuenta el criterio de Currie [97], mediante la expresión 23.

$$AMD = \frac{3,29 \cdot \sqrt{\frac{cpmf_{\beta}}{T_m} + \frac{cpmf_{\beta}}{T_f} + \gamma^2 \left( \frac{cpm_{\alpha} - cpmf_{\alpha}}{T_m} \right)} + 2,7 \cdot \left( \frac{1}{T_m} + \frac{1}{T_f} \right)}{60 \cdot ef_{\beta} \cdot fa \cdot m} \quad <23>$$

donde,

$AMD$  es la actividad mínima detectable  $\beta$ , en  $Bq \cdot g^{-1}$ ;

$T_m$  es el tiempo de medida de la muestra, en minutos;

$T_f$  es el tiempo de medida del fondo, en minutos;

y el resto de los términos han sido definidos anteriormente.

### 3.3.3 Caracterización de bultos homogéneos mediante espectrometría $\gamma$ con ISOCS

La caracterización de bultos mediante espectrometría  $\gamma$  con un detector de Ge requiere como se ha comentado anteriormente realizar una calibración previa del detector. Por una parte la calibración en energías necesaria para obtener información cualitativa de la radiación y por otra la calibración en eficiencias que proporciona sus características cuantitativas.

El software utilizado para la realización de este estudio, fue *Geometry Composer*, mediante el cual se definió una geometría determinada, para el caso concreto de bidones homogéneos se seleccionó el modelo de *Simple Cylinder*.

La caracterización de bultos homogéneos se realizó tanto en estático (bidón parado) como en dinámico con movimiento de rotación uniforme (bidón girando), haciendo uso del código matemático ISOCS de Canberra para la determinación de la curva de calibración en eficiencia, que está basado en un código Monte Carlo.

Las variables que se estudiaron en esta caracterización por considerarse las más influyentes, y por ser las causantes de una gran cantidad de errores sistemáticos que se introducen en la determinación de la actividad de bidones con residuos fueron [74, 76, 101]:

- Distancia bulto-detector.
- Colimador y absorbente.
- Composición de la matriz.
- Densidad de la matriz.

Los estudios se realizaron considerando que la composición de la matriz era homogénea y existía un reparto uniforme de la actividad en el bidón [43, 56, 102-108]. Además, se efectuaron ensayos tanto en estático como en dinámico con el objeto de verificar la homogeneidad del bulto.

### 3.3.4 Caracterización de bultos heterogéneos mediante espectrometría $\gamma$ con ISOCS

El software utilizado para la realización de este estudio fue *Geometry Composer*, mediante el cual se definió una geometría determinada, para el caso concreto de bidones heterogéneos se seleccionó el modelo *Complex Pipe*.

La caracterización de bultos heterogéneos mediante espectrometría  $\gamma$  *in situ* utilizando el código de Canberra ISOCS para la determinación de la curva de calibración en eficiencia, se realizó en estático (bidón parado) para diversas posiciones y ángulos y en dinámico con movimiento de rotación uniforme (bidón girando) y ponderando en función de la distancia de la fuente al detector.

Para la realización de este estudio se usó una fuente de referencia de  $^{152}\text{Eu}$  colocada en cinco posiciones radiales diferentes en bidones de acero inoxidable de  $0,22 \text{ m}^3$  de volumen. Los bidones utilizados contenían cinco tubos huecos verticales de 3,5 cm de diámetro, colocados en las siguientes posiciones radiales: P1 a 27 cm del centro, P2 a 21 cm, P3 a 14 cm, P4 a 7 cm y P5 en el centro del bidón. Estos tubos se usaron para ubicar la fuente de referencia dentro del bidón y realizar la calibración en eficiencias. Los ensayos se realizaron para tres tipos de matrices distintas: aire, arlita y arena.

La disposición de los tubos en el bidón se eligió de tal manera que la fuente recorriese toda la distancia radial del bidón, es decir desde el borde exterior hasta el centro del bidón, de forma que las variaciones radiales de la posición de la fuente, conjuntamente con las diferentes disposiciones angulares obtenidas por rotación del bidón con respecto al detector, originasen un conjunto de posiciones de la fuente que sirvieran para promediar la respuesta del sistema en el caso de residuos no homogéneos.

Los ensayos en estático se realizaron para las cinco posiciones radiales y cuatro distribuciones angulares diferentes obtenidas mediante giros sucesivos de  $90^\circ$ , originando en total veinte posiciones, diecisiete de ellas diferentes, apartado 4.4.1.

La determinación de la actividad en dinámico se realizó haciendo uso de las eficiencias obtenidas en estático para cada una de las cinco posiciones radiales estudiadas, pero teniendo en cuenta la distancia de la fuente al detector y considerando las cuatro disposiciones angulares contempladas en estático, apartado 4.4.2.

### 3.3.5 Método propuesto

La selección del método adecuado para la caracterización de un bulto con materiales residuales mediante espectrometría  $\gamma$  con ISOCS, se determinó teniendo en cuenta principalmente la densidad y la tipología homogéneo/heterogéneo del material residual, como se verá en el apartado 4.5.

En la Figura 18 se presenta de forma esquemática un resumen con el método propuesto para la caracterización de bultos con materiales residuales mediante

espectrometría  $\gamma$ , obtenido a partir del análisis de los resultados de los diferentes ensayos realizados.

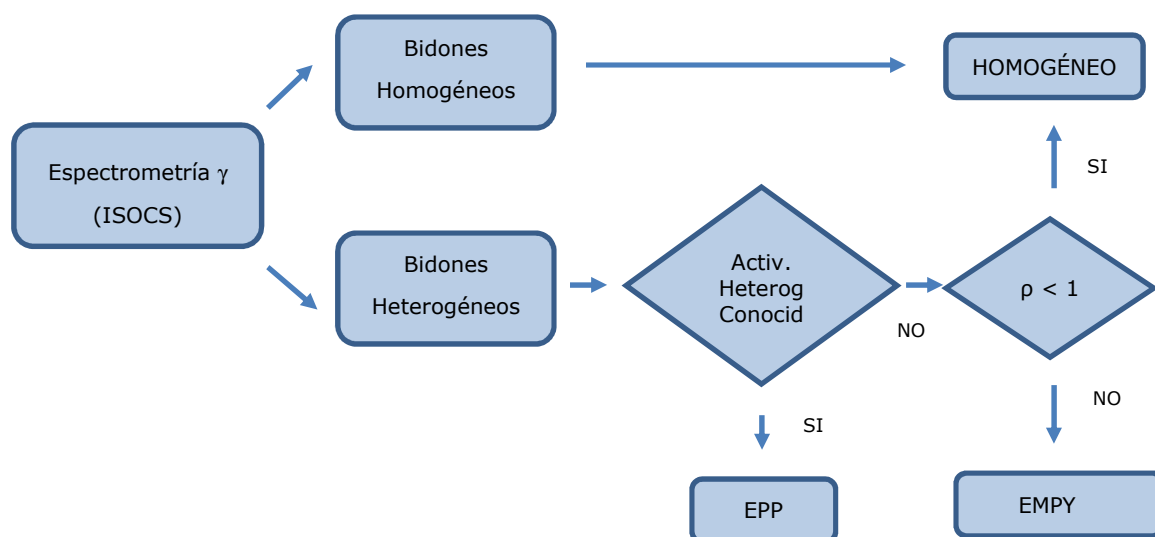


Figura 18. Esquema representativo para la caracterización de bultos con materiales residuales mediante espectrometría  $\gamma$ .

## 4 Resultados y discusión

---

En este capítulo se presentan los resultados obtenidos en los diferentes ensayos realizados:

- Puesta a punto del contador proporcional de flujo continuo de gas de bajo fondo, marca Protean, modelo MPC-9604.
- Determinación del índice de actividad  $\alpha$  y  $\beta$  total.
- Caracterización de bultos homogéneos mediante espectrometría  $\gamma$  con ISOCS.
- Caracterización de bultos heterogéneos mediante espectrometría  $\gamma$  con ISOCS.

A continuación y en base a los resultados obtenidos en los diferentes ensayos, se establece:

- Metodología para la caracterización de bultos con materiales residuales mediante espectrometría  $\gamma$ .
- Aplicación de la metodología en la caracterización de materiales residuales generados en los trabajos de rehabilitación de la zona de "La Lenteja" del CIEMAT.

Finalmente se evalúa el ahorro económico que supone la realización del proceso de desclasificación mediante la realización:

- Estudio económico.

### 4.1 Puesta a punto del contador proporcional MPC-9604 de Protean

Como ya se ha indicado en el punto 3.3.1, la puesta a punto del contador proporcional MPC-9604, requiere la determinación de su voltaje óptimo de recuento. Los estudios realizados para su determinación fueron los siguientes:

- Determinación de las curvas características.
- Determinación de eficiencias y fondos.
- Determinación del *spillover*.
- Determinación de las figuras de mérito.
- Determinación del factor de autoabsorción.

#### 4.1.1 Determinación de las curvas características

La curva característica consiste en la representación gráfica de las cuentas detectadas en cada una de las ventanas  $\alpha$  y  $\beta$  para cada patrón, frente a los diferentes valores de

potencial. La curva característica permite definir el intervalo óptimo de potenciales de trabajo. En la Figura 19 y la Figura 20 se han representado las curvas características para las ventanas  $\alpha$  y  $\beta$  respectivamente, para cada uno de los cuatro detectores del contador proporcional. Se observa que el intervalo óptimo de potencial de trabajo va de 1275 a 1725 V, zona donde las curvas características presentan una meseta o *plateau*.

El potencial umbral a partir del cual se comienza a registrar cuentas en la ventana  $\alpha$  es de 1125 V, entre 1400 y 1600 V existe una meseta y a partir de 1700 V se produce un fuerte incremento en el recuento de cuentas en dicha ventana (Figura 19). Una posible explicación a este fuerte incremento en el número de cuentas  $\alpha$  que se produce a partir de 1700 V, es que al aumentar el potencial aumentan los impulsos  $\beta$  y el equipo los clasifica como partículas  $\alpha$ , por lo que se observa un aumento apreciable en el recuento en la ventana  $\alpha$ .

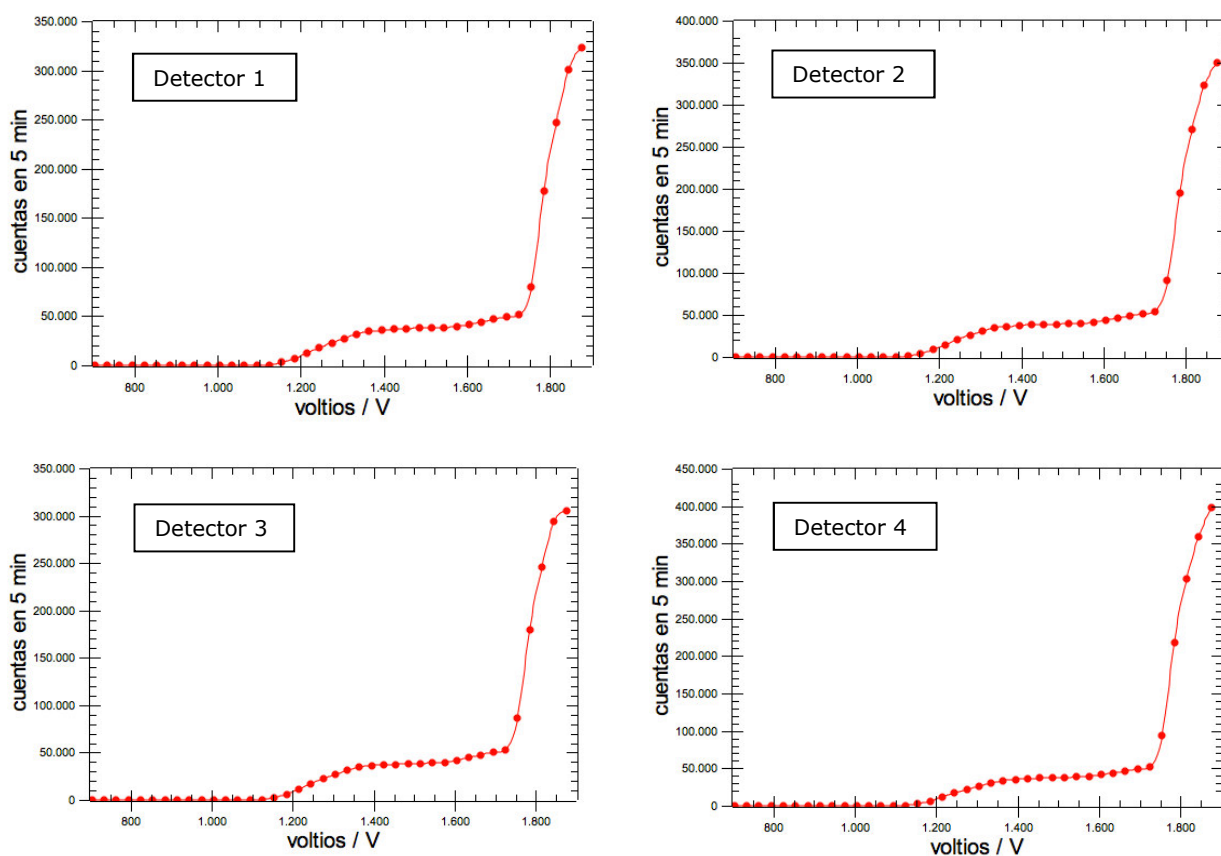


Figura 19. Curvas características  $\alpha$  de los cuatro detectores del contador proporcional MPC-9604.

En el caso de las ventanas  $\beta$ , las curvas características  $\beta$  de los detectores del contador proporcional presentan un potencial umbral a 975 V a partir del cual se comienza a registrar cuentas, la meseta se sitúa entre 1395 y 1575 V, y a partir de 1575 V se produce una importante disminución del número de cuentas (Figura 20).

Como se puede apreciar en la Figura 20, las curvas características  $\beta$  no presentan una meseta tan marcada como en el caso de las curvas características  $\alpha$ . Sin embargo, en ambos casos el intervalo de potenciales óptimo de trabajo es coincidente.

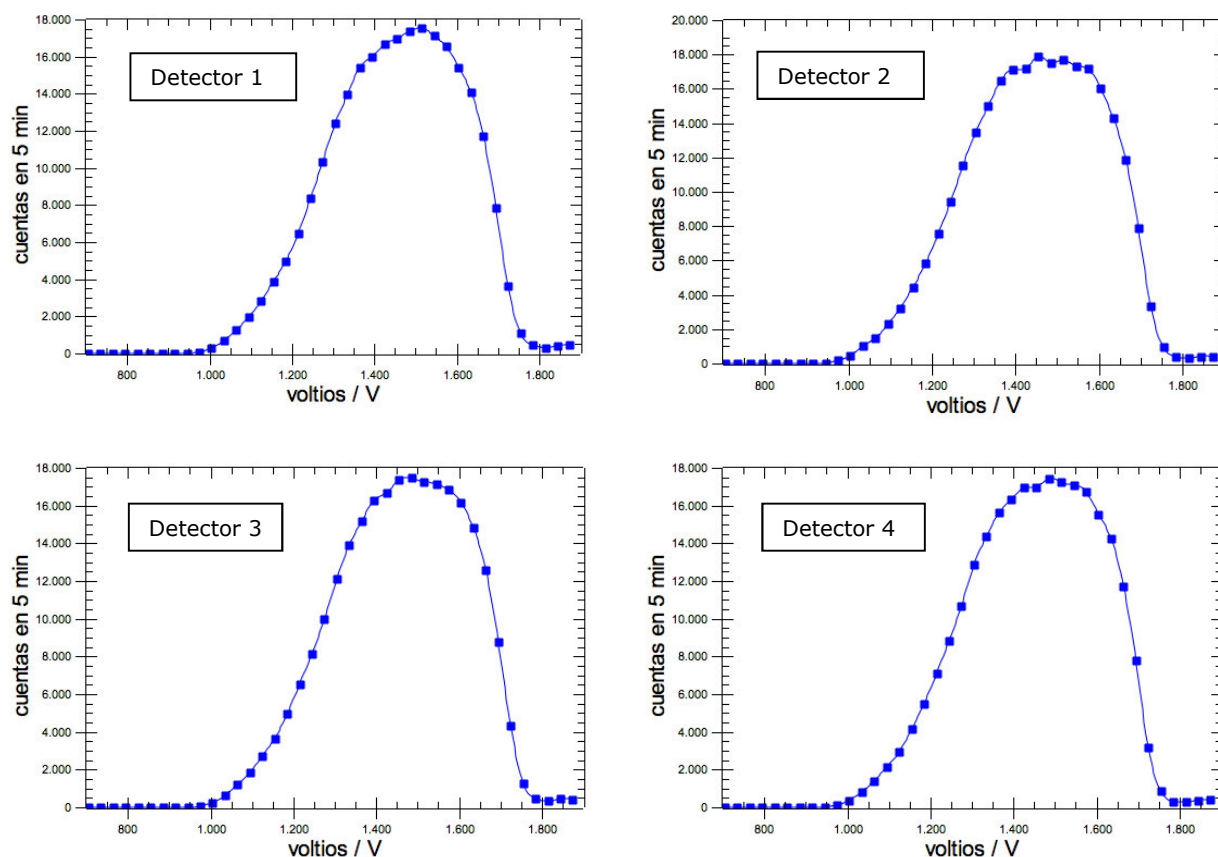


Figura 20. Curvas características  $\beta$  de los cuatro detectores del contador proporcional MPC-9604.

#### 4.1.2 Determinación de eficiencias y fondos

Una vez definida la zona óptima de trabajo a partir de las curvas características, se procedió a la realización de 16 medidas de los patrones de  $^{241}\text{Am}$  y de  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  durante 5 min cada una de ellas, para el intervalo de potenciales comprendido entre 1275 y 1725 V, con incrementos de potencial de 30 V.

En la Tabla I y Tabla II se muestran las eficiencias medidas para cada detector de acuerdo con las ecuaciones definidas en el apartado 3.3.1.2. Se observa como en el caso de la ventana  $\alpha$ , la eficiencia oscila entre un 27 y un 33 % para potenciales comprendidos entre 1400 – 1600 V (Tabla I). Respecto a la medida en la ventana  $\beta$ , la eficiencia es superior al 45 % para potenciales comprendidos en el intervalo de 1425 – 1575 V (Tabla II).

En la Tabla III se recogen las 16 medidas de los fondos que se tomaron durante 1000 minutos cada una de ellas, para el intervalo de potenciales comprendido entre 1275 - 1725 V a incrementos de 30 V. Se aprecia que el fondo en la ventana  $\alpha$  se mantiene inferior a 200 cuentas (0,2 cpm) hasta un potencial de 1515 V y el fondo en la ventana  $\beta$  es inferior a 1000 cuentas (1 cpm) hasta ese mismo potencial de 1515 V.



Tabla I. Valores de la eficiencia de recuento  $\alpha$  (%) en función del potencial (V).

<b>Voltaje</b>	<b>Detector 1 <math>ef_{\alpha}</math></b>	<b>Detector 2 <math>ef_{\alpha}</math></b>	<b>Detector 3 <math>ef_{\alpha}</math></b>	<b>Detector 4 <math>ef_{\alpha}</math></b>
1275	17,38	19,79	17,05	16,60
1305	20,69	23,03	20,37	19,94
1335	24,19	26,30	23,68	22,71
1365	26,09	27,38	26,27	25,39
1395	26,96	28,30	27,60	26,82
1425	27,93	29,15	28,19	27,49
1455	28,09	29,59	28,49	28,05
1485	29,04	29,56	29,10	28,46
1515	28,71	30,00	29,19	28,46
1545	29,16	30,05	29,71	29,28
1575	29,92	31,21	30,24	29,85
1605	31,38	33,15	31,78	31,37
1635	33,48	35,21	33,93	33,16
1665	35,42	36,95	36,04	35,02
1695	37,10	38,90	38,07	37,24
1725	38,79	41,31	40,21	39,35

Tabla II. Valores de la eficiencia de recuento  $\beta$  (%) en función del potencial (V).

<b>Voltaje</b>	<b>Detector 1 <math>ef_{\beta}</math></b>	<b>Detector 2 <math>ef_{\beta}</math></b>	<b>Detector 3 <math>ef_{\beta}</math></b>	<b>Detector 4 <math>ef_{\beta}</math></b>
1275	28,22	31,50	27,21	29,09
1305	33,79	36,72	33,00	35,08
1335	38,09	40,92	37,97	39,17
1365	42,09	44,95	41,42	42,59
1395	43,67	46,71	44,37	44,54
1425	45,49	46,84	45,50	46,27
1455	46,28	48,78	47,40	46,26
1485	47,37	47,80	47,61	47,54
1515	47,83	48,30	47,10	47,02
1545	46,75	47,27	46,80	46,60
1575	45,09	46,81	45,95	45,69
1605	42,08	43,69	44,10	42,40
1635	38,42	38,96	40,43	38,93
1665	31,91	32,35	34,25	32,02
1695	21,43	21,45	23,86	21,18
1725	9,85	9,03	11,87	8,62

Tabla III. Valores de fondo  $\alpha$  y  $\beta$  en cuentas en función del potencial (V) para  $t=1000$  min.

Voltaje	Detector 1 $ef_{\beta}$		Detector 2 $ef_{\beta}$		Detector 3 $ef_{\beta}$		Detector 4 $ef_{\beta}$	
	$fvent_{\alpha}$	$fvent_{\beta}$	$fvent_{\alpha}$	$fvent_{\beta}$	$fvent_{\alpha}$	$fvent_{\beta}$	$fvent_{\alpha}$	$fvent_{\beta}$
1275	61	556	34	546	38	478	34	571
1305	69	683	69	620	55	572	65	759
1335	187	913	161	837	150	828	164	931
1365	146	906	134	860	109	846	113	971
1395	89	891	85	823	91	863	93	983
1425	143	965	129	944	113	923	106	1014
1455	117	1005	99	922	97	916	118	959
1485	201	1023	150	970	155	931	156	1084
1515	172	990	142	908	145	885	147	1049
1545	441	1277	334	1113	359	1141	387	1213
1575	308	1031	317	877	252	874	252	1013
1605	583	1183	518	886	515	1015	461	1126
1635	444	712	435	664	414	710	464	772
1665	1224	1366	1036	943	1063	1046	1040	1123
1695	1371	995	1217	689	1152	665	1297	747
1725	1918	1441	1723	1060	1676	940	1785	1018

#### 4.1.3 Determinación del spillover

Como ya se ha comentado anteriormente, el contador proporcional MPC-9604 realiza las medidas en modo simultáneo por lo que va provisto de dos ventanas, una  $\alpha$  y otra  $\beta$ . Mediante el uso de discriminadores con diferentes umbrales de separación de impulsos se consigue la separación de impulsos  $\alpha$  y  $\beta$ . Sin embargo, puede ocurrir que impulsos  $\alpha$  se cuenten en la ventana  $\beta$  y viceversa, denominándose a este fenómeno *spillover*.

La determinación del *spillover* se ha realizado de acuerdo con las ecuaciones del apartado 3.3.1.3. En la Figura 21 se ha representado el *spillover* en la ventana  $\alpha$  y ventana  $\beta$  para los distintos detectores del contador proporcional. El *spillover* en la ventana  $\alpha$  sólo empieza a ser apreciable a partir de 1545 V. Sin embargo, para la ventana  $\beta$  el *spillover* es apreciable en todo el intervalo óptimo de potencial de trabajo. Por tanto, en la medida del índice de actividad  $\beta$  total siempre será necesario realizar la corrección por *spillover* [27], mientras que en el caso de la ventana  $\alpha$  no es necesaria dicha corrección.

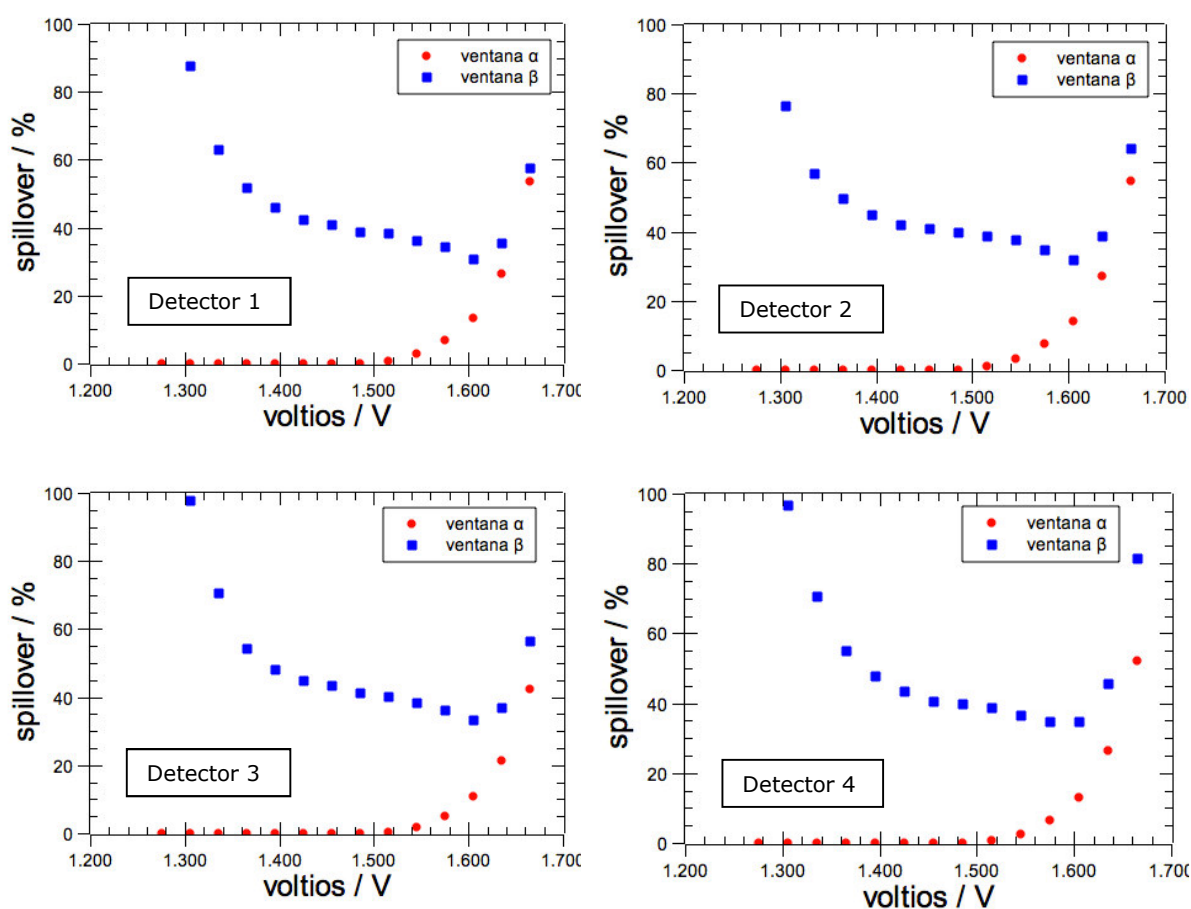


Figura 21. *Spillover* medido en la ventana  $\alpha$  y  $\beta$  para los cuatro detectores del contador proporcional MPC-9604.

#### 4.1.4 Determinación de las figuras de mérito

El potencial óptimo de trabajo del contador proporcional se define como aquel valor de voltaje que proporciona la mejor figura de mérito (*FM*), expresión 10. Los cuatro detectores están alimentados por una misma fuente de alta tensión, lo cual implica que el voltaje no puede ser seleccionado para un único detector, sino que se ha de determinar un valor medio de los voltajes de los cuatro detectores para determinar el potencial óptimo de trabajo.

En la Figura 22, se han representado las figuras de mérito en función del potencial para la ventana  $\alpha$  de los cuatro detectores del contador proporcional.

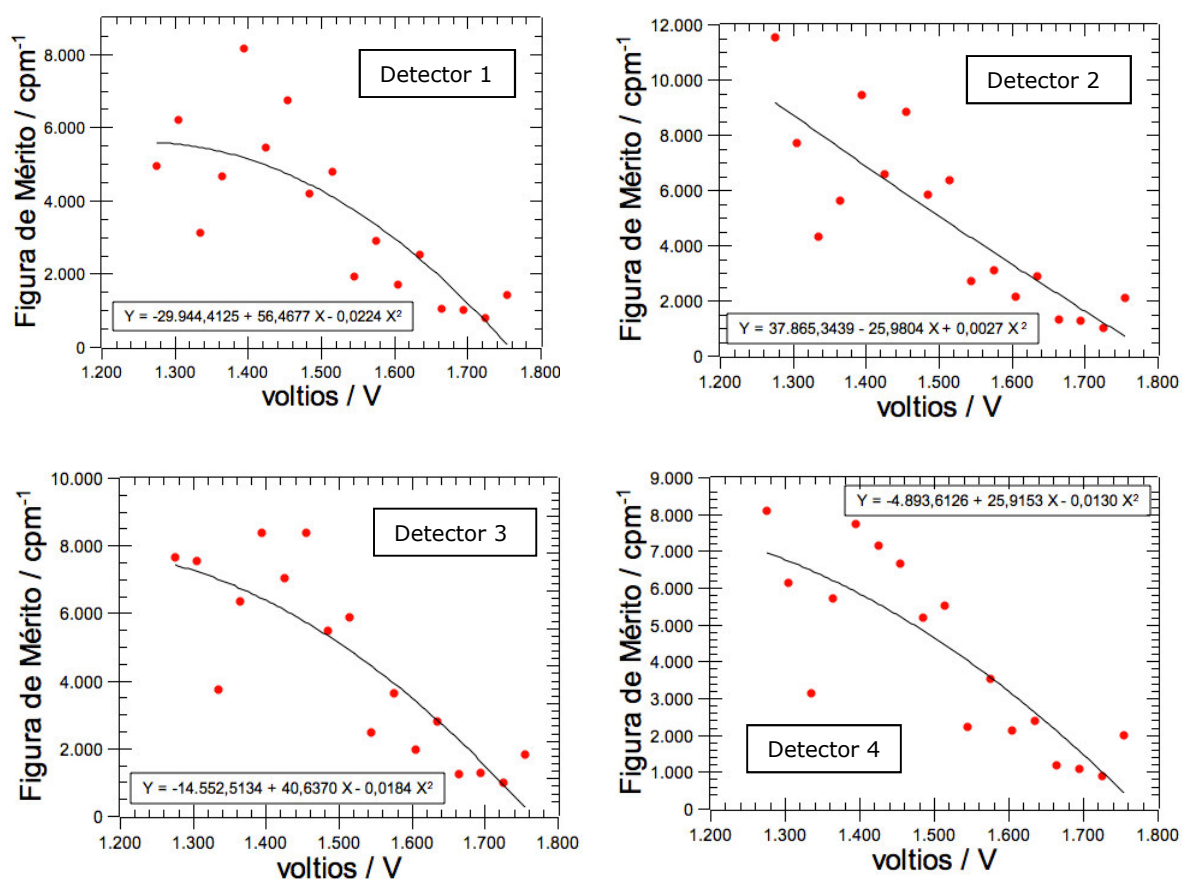


Figura 22. Figuras de mérito para las ventanas  $\alpha$  de los cuatro detectores del contador proporcional MPC-9604.

Como puede observarse, los valores presentan una tendencia descendente, con valores máximos poco marcados, aunque en general cercanos a voltajes ligeramente superiores a 1400 V. Este comportamiento es normal dado que se trata de un equipo multidetector que trabaja en modo simultáneo, por lo que el valor del potencial óptimo de trabajo del equipo será el determinado en la ventana  $\beta$ .

Análogamente, en la Figura 23 se han representado las figuras de mérito en función del potencial para la ventana  $\beta$  de los cuatro detectores del contador proporcional. Una vez realizado el ajuste de las figuras de mérito a un polinomio de segundo grado, el valor medio de los máximos de las cuatro figuras de mérito se obtiene para un potencial de 1485 V, siendo por tanto éste el potencial óptimo de trabajo del equipo.

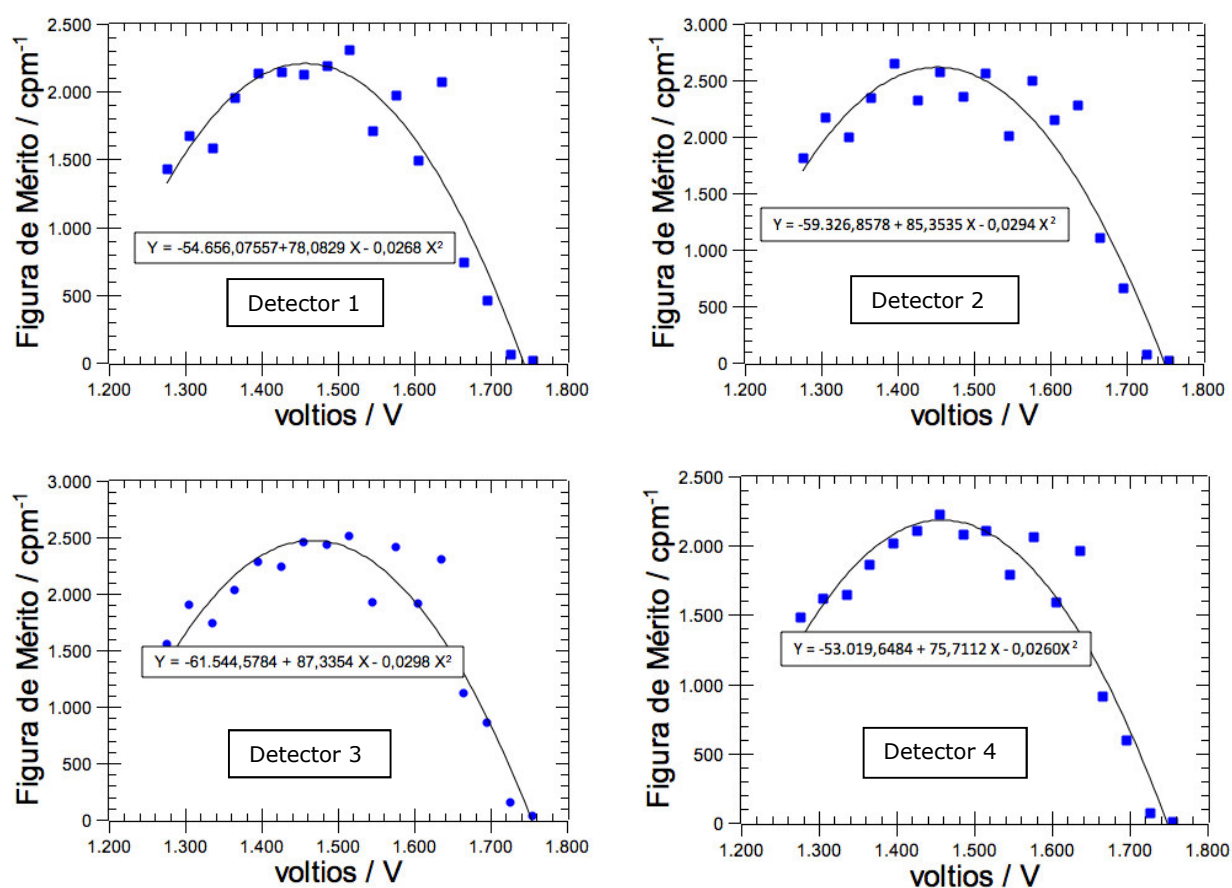


Figura 23. Figuras de mérito para las ventanas  $\beta$  de los cuatro detectores del contador proporcional MPC-9604.

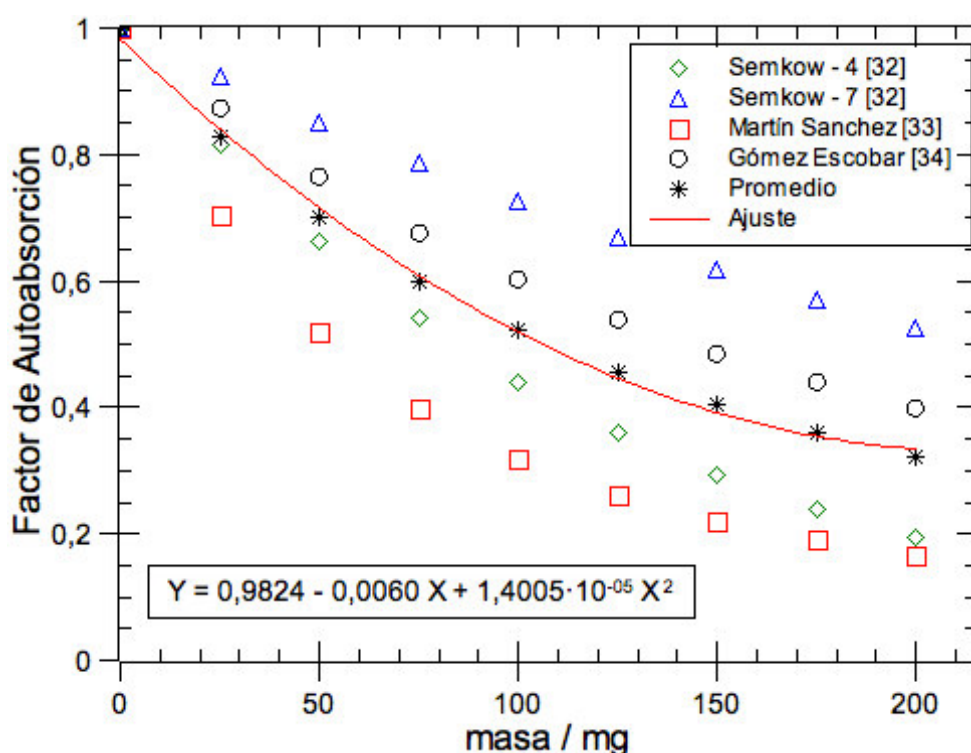
#### 4.1.5 Determinación del factor de autoabsorción

La determinación de los índices de actividad  $\alpha$  y  $\beta$  total requieren del cálculo previo del factor de autoabsorción que corrige la pérdida de eficiencia que sufren tanto las partículas  $\alpha$  como las  $\beta$  al interaccionar con la materia. Los factores de autoabsorción para la determinación del índice de actividad  $\alpha$  total se han determinado a partir de las curvas de autoabsorción recogidas en la bibliografía [109-111]. En la Tabla IV se recogen las distintas ecuaciones en las que se relaciona la eficiencia en función de la masa del residuo final ( $x$ ) mediante diferentes parámetros de ajuste ( $A$ ,  $B$ ,  $a$  y  $b$ ). Dichas curvas, se han ajustado a funciones polinómicas de segundo grado. A continuación se ha determinado la curva promedio de todas ellas.

En la Figura 24 se representan los ajustes cuadráticos con los que se obtienen los factores de autoabsorción  $\alpha$  obtenidos para los diferentes modelos recogidos en la bibliografía, así como la media de todos ellos, que es la que se utilizó para la determinación del índice de actividad  $\alpha$  total.

Tabla IV. Curvas de autoabsorción.

Referencia	Ecuación	Ajuste	R <sup>2</sup>
Mod. G-E [111]	$\varepsilon(x) = A \frac{(1 - e^{-Bx})}{Bx}$	$fa = 0,00001 \cdot x^2 - 0,0049 \cdot x + 0,9927$	0,999
Mod. M-S [110]	$\varepsilon(x) = Aa \frac{(1 - e^{-Bax})}{Bax}$	$fa = 0,00003 \cdot x^2 - 0,0091 \cdot x + 0,9499$	0,985
Mod. S-4 [109]	$\varepsilon(x) = ae^{-bx}$	$fa = 0,00002 \cdot x^2 - 0,0071 \cdot x + 0,988$	0,999
Mod. S-7 [109]	$\varepsilon(x) = ae^{-bx}$	$fa = 0,000004 \cdot x^2 - 0,0031 \cdot x + 0,9989$	1,000
Media		<b><math>fa = 0,000014 \cdot x^2 - 0,006041 \cdot x + 0,9824</math></b>	0,997

Figura 24. Curvas de autoabsorción  $\alpha$ .

En el caso de la autoabsorción  $\beta$ , se utilizó el modelo recogido en la bibliografía [23], correspondiente a la ecuación 24.

$$fa = \frac{1 - e^{-a \cdot x}}{a \cdot x} \quad <24>$$

donde,

$a$  es el valor del coeficiente de ajuste que es 0,00131 en miligramos a la menos uno [112];

$x$  es el peso de la muestra en miligramos.

## 4.2 Determinación de los índices de actividad $\alpha$ y $\beta$ total

En este apartado se detallan los resultados obtenidos en la determinación de los índices de actividad  $\alpha$  y  $\beta$  total, así como sus correspondientes actividades mínimas detectables (AMD), con el fin de comprobar que la técnica es adecuada y cumple los requisitos necesarios para poder ser utilizada en los procesos de desclasificación de materiales.

Las muestras utilizadas para la determinación de los índices de actividad fueron muestras provenientes de sondeos de zonas donde se han realizado trabajos de rehabilitación. Las muestras fueron medidas 1440 min, tiempo suficiente para alcanzar una AMD en el caso del índice  $\beta$  total inferior al 50 % del nivel de desclasificación para el radionucleido emisor  $\beta$  más restrictivo,  $^{90}\text{Sr}$ .

En la Tabla V y Tabla VI se recogen los índices de actividad  $\alpha$  y  $\beta$  total que se han determinado con las ecuaciones 17 y 21 respectivamente; y las actividades mínimas detectables (AMD) se determinaron con las ecuaciones 20 y 23. Los resultados obtenidos fueron comparados a los de otro laboratorio del CIEMAT, que determinó dichos índices mediante la técnica de medida de centelleo líquido y cuyos resultados se recogen en la última columna de la Tabla V y Tabla VI como Lab. X.

Como se puede apreciar, los resultados obtenidos para el índice de actividad  $\alpha$  total haciendo uso del contador proporcional son estadísticamente comparables a los obtenidos mediante la técnica de centelleo líquido (Lab. X) y presentan un solapamiento para un factor de cobertura de  $k = 2$  en el 90% de los casos.

En lo que respecta a los resultados obtenidos para el índice de actividad  $\beta$  total haciendo uso del contador proporcional, presentan un solapamiento en el 80 % de los casos con los obtenidos mediante la técnica de centelleo líquido (Lab. X), para un factor de cobertura de  $k = 2$ .

Tabla V. Índices de actividad  $\alpha$  total ( $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ ).

Ref.	Actividad $_{\alpha}$	AMD	$\bar{A}_{\alpha}$	AMD	Lab. X
10-0103A	$0,36 \pm 0,14$	0,06	$0,40 \pm 0,18$	0,06	$0,69 \pm 0,42$
10-0103B	$0,44 \pm 0,18$	0,06			
10-0104A	$0,69 \pm 0,27$	0,06	$0,700 \pm 0,040$	0,06	$0,69 \pm 0,29$
10-0104B	$0,70 \pm 0,28$	0,06			
10-0105A	$0,93 \pm 0,37$	0,06	$0,92 \pm 0,59$	0,06	$0,88 \pm 0,33$
10-0105B	$0,90 \pm 0,36$	0,06			
10-0106A	$0,50 \pm 0,19$	0,06	$0,48 \pm 0,11$	0,06	$0,51 \pm 0,26$
10-0106B	$0,45 \pm 0,17$	0,06			
10-0107A	$0,71 \pm 0,28$	0,06	$0,73 \pm 0,10$	0,06	$0,840 \pm 0,080$
10-0107B	$0,75 \pm 0,28$	0,06			

Ref.	Actividad <sub>α</sub>	AMD	$\bar{A}_\alpha$	AMD	Lab. X
10-0108A	0,61 ± 0,21	0,05	0,69 ± 0,38	0,06	1,13 ± 0,12
10-0108B	0,77 ± 0,31	0,06			
10-0109A	0,79 ± 0,38	0,07	0,82 ± 0,12	0,07	0,92 ± 0,27
10-0109B	0,85 ± 0,36	0,06			
10-0110A	0,58 ± 0,23	0,06	0,65 ± 0,33	0,06	0,83 ± 0,29
10-0110B	0,72 ± 0,27	0,06			
10-0111A	1,07 ± 0,43	0,06	0,84 ± 0,55	0,06	0,78 ± 0,31
10-0111B	0,60 ± 0,26	0,06			
10-0112A	0,63 ± 0,27	0,06	0,620 ± 0,030	0,06	0,87 ± 0,22
10-0112B	0,61 ± 0,27	0,06			

Las incertidumbres están expresadas para un factor de cobertura  $k = 2$ .

Tabla VI. Índices de actividad  $\beta$  total ( $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ ).

Ref.	Actividad <sub>β</sub>	AMD	$\bar{A}_\beta$	AMD	Lab. X
10-0103A	1,62 ± 0,23	0,04	1,72 ± 0,47	0,04	< 2,0
10-0103B	1,82 ± 0,26	0,04			
10-0104A	2,20 ± 0,31	0,04	2,12 ± 0,38	0,04	< 2,6
10-0104B	2,03 ± 0,29	0,04			
10-0105A	34,98 ± 4,46	0,04	33,2 ± 7,9	0,04	27,8 ± 3,3
10-0105B	31,49 ± 3,98	0,04			
10-0106A	3,18 ± 0,42	0,04	2,8 ± 1,9	0,04	< 2,0
10-0106B	2,32 ± 0,31	0,04			
10-0107A	51,34 ± 6,55	0,04	52,7 ± 6,2	0,04	63,7 ± 5,1
10-0107B	54,10 ± 6,83	0,04			
10-0108A	34,14 ± 4,33	0,03	37 ± 11	0,04	38,0 ± 3,0
10-0108B	39,17 ± 4,98	0,04			
10-0109A	67,78 ± 8,65	0,05	67,61 ± 0,78	0,05	49,6 ± 4,0
10-0109B	67,44 ± 8,52	0,04			
10-0110A	7,61 ± 0,97	0,04	7,79 ± 0,83	0,04	5,4 ± 1,0
10-0110B	7,97 ± 1,02	0,04			
10-0111A	2,45 ± 0,34	0,04	2,1 ± 1,6	0,04	< 2,2
10-0111B	1,76 ± 0,27	0,04			
10-0112A	1,94 ± 0,29	0,04	1,82 ± 0,56	0,05	< 2,2
10-0112B	1,69 ± 0,27	0,05			

Las incertidumbres están expresadas para un factor de cobertura  $k = 2$ .



#### 4.2.1 Validación del contador proporcional de flujo continuo MPC-9604

La validación del contador proporcional de flujo continuo MPC-9604 se realizó sobre la eficiencia de los detectores así como sobre los índices de actividad.

##### 4.2.1.1 Eficiencia

Con el objeto de verificar la eficiencia del contador proporcional se procedió a su validación haciendo uso de dos fuentes calibradas de  $^{137}\text{Cs}$ . Para ello se determinó la eficiencia de cada detector para cada una de las dos fuentes al potencial óptimo de trabajo determinado (1485 V). Los tiempos de medida fueron de 1440 min y los resultados obtenidos se recogen en la Tabla VII. La eficiencia media del contador proporcional en la ventana  $\beta$  fue de 45,13 %. Por tanto, el porcentaje de diferencia entre el valor determinado en los ensayos de puesta a punto (Tabla II) y el valor determinado en la validación (Tabla VII) es un 5 % superior, porcentaje admisible para la determinación del índice de actividad  $\beta$  total con un nivel de confianza del 95 %.

Tabla VII. Valores de la eficiencia de recuento  $\beta$  (%) para los distintos detectores a 1485 V.

	<b>Detector 1 <math>ef_{\beta}</math></b>	<b>Detector 2 <math>ef_{\beta}</math></b>	<b>Detector 3 <math>ef_{\beta}</math></b>	<b>Detector 4 <math>ef_{\beta}</math></b>
$^{137}\text{Cs}$ (174 Bq)	43,51	43,61	44,70	43,58
$^{137}\text{Cs}$ (522 Bq)	46,12	46,74	46,70	46,02

##### 4.2.1.2 Índices de actividad

La validación de los índices de actividad  $\alpha$  y  $\beta$  total determinados con el contador proporcional MPC-9604 se realizó mediante la determinación de dichos índices de actividad  $\alpha$  y  $\beta$  total por otro laboratorio del CIEMAT, Lab. X, sobre las mismas muestras, pero utilizando la técnica de centelleo líquido. Los resultados así obtenidos para los índices de actividad se recogen en la última columna de la Tabla V y Tabla VI, comparándose con los obtenidos mediante la puesta a punto del contador proporcional MPC-9604.

El criterio utilizado para comparar los resultados fue el de su grado de solapamiento. El grado de solapamiento de los resultados para el índice de actividad  $\alpha$  total se produjo en un 90 % de los casos, mientras que en el caso de los resultados del índice de actividad  $\beta$  total, el grado de solapamiento se produjo en un 80 %.

Debido al menor grado de solapamiento en el índice de actividad  $\beta$  total, se realizó un estudio estadístico para comprobar si los resultados eran comparables. La varianza de los dos conjuntos de muestras se comparó mediante la prueba F de Fisher, y las medias utilizando la t de Student para medias de resultados emparejados [113].

En la Tabla VIII se recogen los valores obtenidos en la prueba F para varianzas de dos conjuntos de muestras y en la Tabla IX se recogen los correspondientes a la prueba t para medias de dos conjuntos de muestras emparejadas. Los resultados demostraron que los dos conjuntos de muestras eran comparables, ya que tanto el estadístico F como el estadístico t fueron inferiores a sus valores críticos. Por tanto, el estudio estadístico realizado sobre los resultados permite concluir que la medida de los índices de actividad  $\alpha$  y  $\beta$  total obtenidos

mediante el contador proporcional de flujo continuo de gas MPC-9604 de Protean es satisfactoria.

Con el objeto de completar la validación de la técnica para su utilización en la desclasificación de materiales, fue necesario comprobar si las AMD's eran menores o iguales al 50 % de los niveles de desclasificación de los radionucleidos más restrictivos, considerando AMD's de  $0,05 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$  para los emisores  $\alpha$  y de  $0,5 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$  para los emisores  $\beta$ .

Tabla VIII. Prueba F para varianzas de dos conjuntos de muestras.

	<b>Variable <math>\alpha</math></b>	<b>Variable <math>\alpha</math> (X)</b>	<b>Variable <math>\beta</math></b>	<b>Variable <math>\beta</math> (X)</b>
Media	0,685	0,815	20,852	19,910
Varianza	0,025	0,027	614,847	536,007
Observaciones	10	10	10	10
Grados de libertad	9	9	9	9
F	0,922		1,147	
P( $F \leq f$ ) una cola	0,453		0,421	
Valor crítico para F (una cola)	3,179		3,179	

En el caso del índice de actividad  $\beta$  total que se presenta en la Tabla VI, se comprobó que con los tiempos de medida de 1440 min se alcanzaba una AMD menor que el 50 % de los niveles de desclasificación. Sin embargo, en el caso de la determinación del índice de actividad  $\alpha$  total (Tabla V), para el tiempo de medida de 1440 min no se alcanzaron las AMD's necesarias. Este tiempo de medida de 1440 min fue seleccionado en base a caracterizaciones previas de muestras, habiéndose considerado inicialmente un tiempo suficiente para obtener la estadística de medida adecuada.

Para cuantificar los índices de actividad  $\alpha$  y  $\beta$  total en muestras de materiales potencialmente desclasificables, es necesario incrementar el tiempo de medida, estimándose que un tiempo de 4320 min permitía alcanzar la AMD necesaria para el emisor  $\alpha$  más crítico ( $^{239+0}\text{Pu}$ ). En el caso concreto de las muestras de la zona de "La Lenteja", donde no se contempla la presencia de emisores  $\alpha$  (los más restrictivos), con un tiempo de 1440 min sería suficiente para alcanzar la AMD del  $^{90}\text{Sr}$ . Sin embargo, las muestras utilizadas para la puesta a punto del contador proporcional presentan unos índices de actividad superiores a la AMD, siendo por tanto el tiempo de recuento de 1440 min el adecuado. En el caso de obtenerse valores de los índices de actividad inferiores a la AMD, sería necesario que la AMD fuese inferior a  $0,05 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ .

Tabla IX. Prueba t para medias de dos conjuntos de muestras emparejadas.

	Variable $\alpha$	Variable $\alpha(X)$	Variable $\beta$	Variable $\beta(X)$
Media	0,685	0,815	20,852	19,91
Varianza	0,025	0,027	614,847	536,007
Observaciones	10	10	10	10
Coeficiente de correlación de Pearson	0,518		0,955	
Diferencia hipotética de las medias	0		0	
Grados de libertad	9		9	
Estadístico t	2,064		0,402	
P( $T \leq t$ ) una cola	0,014		0,348	
Valor crítico de t (una cola)	1,833		1,833	
P( $T \leq t$ ) dos colas	0,029		0,697	
Valor crítico de t (dos colas)	2,262		2,262	

#### 4.2.2 Conclusiones parciales

- Se han determinado las condiciones óptimas de trabajo del contador proporcional de flujo continuo de gas de bajo fondo, marca Protean, modelo MPC-9604.
- El voltaje óptimo de trabajo de los detectores fue determinado a partir de las curvas características de la ventana  $\beta$ , estableciéndose en 1485 V.
- La determinación del índice de actividad  $\beta$  total requiere de una corrección debida al spillover que se produce en la ventana  $\beta$ , mientras que en el caso de la ventana  $\alpha$  no es necesaria dicha corrección.
- La eficiencia media de los detectores del contador proporcional MPC-9604 en la ventana  $\beta$  fue validada mediante dos fuentes de referencia de  $^{137}\text{Cs}$ , siendo el % de diferencia del 5 %, valor admisible para la determinación del índice de actividad  $\beta$  total con un nivel de confianza del 95 %.
- Los resultados obtenidos mediante la técnica puesta a punto del contador proporcional y los obtenidos por el laboratorio X, tuvieron unos solapamientos del 90 % en el caso del índice de actividad  $\alpha$  total y un 80 % en el caso del índice de actividad  $\beta$  total. El estudio estadístico realizado sobre el índice de actividad  $\beta$  total utilizando la prueba F de Fisher y la t de Student para varianzas y medias de dos conjuntos de muestras emparejadas, permitió comprobar que la varianza y la media eran comparables. Por tanto, la medida de los índices de actividad  $\alpha$  y  $\beta$  total obtenidos mediante el contador proporcional de flujo continuo de gas MPC-9604 son satisfactorios.
- Las AMD's obtenidas para un tiempo de medida de 4320 min, permiten alcanzar unos límites de detección inferiores a  $0,05 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$  para emisores  $\alpha$  y  $0,5 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$  para emisores  $\beta$ , que se corresponden con el 50 % de los niveles de desclasificación de los radionucleidos más restrictivos,  $^{239+0}\text{Pu}$  y  $^{90}\text{Sr}$ .
- La utilización de la técnica del contador proporcional para la determinación de los índices de actividad  $\alpha$  y  $\beta$  total, es adecuada para la caracterización de materiales residuales con el objeto de proceder a su desclasificación.

- Con las condiciones establecidas se alcanzan las AMD's necesarias para desclasificar materiales sólidos provenientes del Proyecto PIMIC.

### 4.3 Caracterización de bultos homogéneos

En este apartado se presentan los resultados obtenidos en los estudios de investigación realizados en la caracterización de bultos homogéneos, haciendo uso del código matemático ISOCS de Canberra basado en un código Monte Carlo.

Las variables que se han investigado en esta caracterización fueron:

- Distancia bulto-detector.
- Colimadores y absorbente.
- Composición de la matriz.
- Densidad de la matriz.

De las variables investigadas, la distancia bulto-detector, la composición y la densidad de la matriz son las más influyentes, por ser las causantes de una gran cantidad de errores sistemáticos que se introducen en la determinación de la actividad de bidones con residuos [74, 76, 101]. Los estudios se han realizado considerando que la composición de la matriz era homogénea y que existía un reparto uniforme de la actividad en el bidón [43, 56, 102-108].

La geometría utilizada con el software *Geometry Composer* para la realización del estudio de bultos homogéneos fue *Simple Cylinder* (Figura 25). Posteriormente se especificaron las composiciones de los tipos de materiales (el del bidón y la matriz del bidón) con sus densidades, así como sus dimensiones (Figura 26). A continuación se seleccionó el colimador, se optó por uno de Pb con un espesor de 50 mm y un ángulo de apertura de 90 ° (Figura 27). Finalmente se procedió a la simulación y cálculo de la curva de eficiencia (Figura 28).

A continuación se exponen los resultados de los ensayos realizados sobre cada una de las variables estudiadas: colimador y absorbente, distancia bulto-detector, composición y densidad de la matriz.

La realización de los estudios de la eficiencia en función del colimador y absorbente se efectuaron directamente sobre bidones reales, mientras que los estudios realizados sobre las tres últimas variables esto es, distancia bulto-detector, composición y densidad de la matriz, se hicieron en bidones simulados.

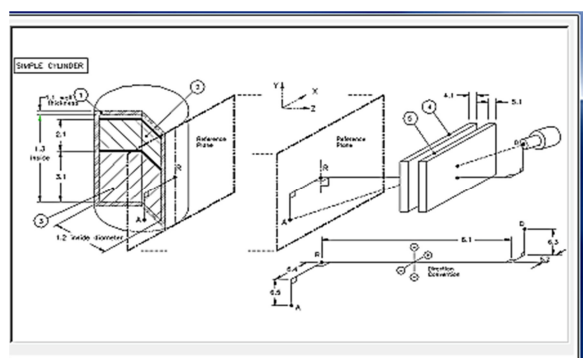


Figura 25. Esquema de selección de geometría: *Simple Cylinder*.

No.	Description	d.1	d.2	d.3	d.4	d.5	Material	Density	Rel.
1	Container	0.2	56.6	86.6			steel	7.86	
2	Source - Top Layer	70					sand	1.2	100.00
3	Source - Bottom	0					(none)	0	0.00
4	Absorber 1	0					(none)	0	
5	Absorber 2	0					(none)	0	
6	Source - Detector	50	0	0	0	0			

Figura 26. Pantalla de introducción de datos dimensionales y de materiales.

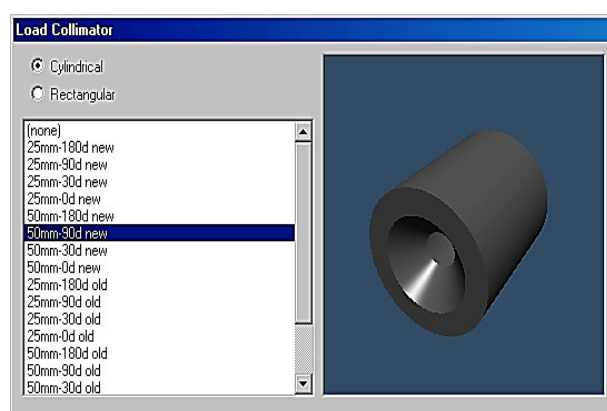


Figura 27. Pantalla de selección del colimador.

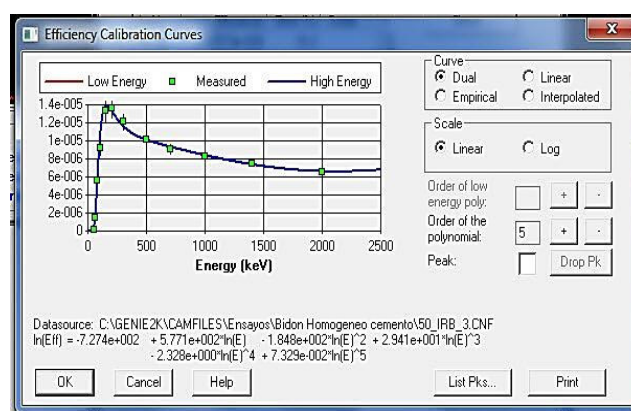


Figura 28. Curva de eficiencia.

#### 4.3.1 Influencia de la distancia bulto-detector en bultos RBBA y desclasificables

En bultos con materiales desclasificables, la distancia bulto-detector es un factor limitante, ya que un incremento elevado de la distancia puede producir una disminución de la eficiencia de recuento y por tanto un incremento en la actividad mínima detectable (AMD). Por ello en este apartado se estudió la influencia de la distancia bulto-detector para bultos con materiales desclasificables y de muy baja actividad (RBBA). En la Figura 29 y la Figura 30 se muestran las distancias bulto-detector mínima y máxima estudiadas, 42 y 80 cm respectivamente. El ángulo sólido generado por el colimador seleccionado (90 °), permitía la medida de forma integral del bulto para todas las distancias analizadas.

En la Figura 31 se ha representado la eficiencia en función de la energía para las diferentes distancias estudiadas. Se observa como el factor distancia bulto-detector, afecta a todo el intervalo de energías, apreciándose que un aumento de la distancia bulto-detector da lugar a un rápido decrecimiento de la eficiencia. La variación de la eficiencia en función de la distancia bidón-detector desde 42 a 80 cm respectivamente, origina un incremento en la actividad mínima detectable del  $^{137}\text{Cs}$  de un 52 %.

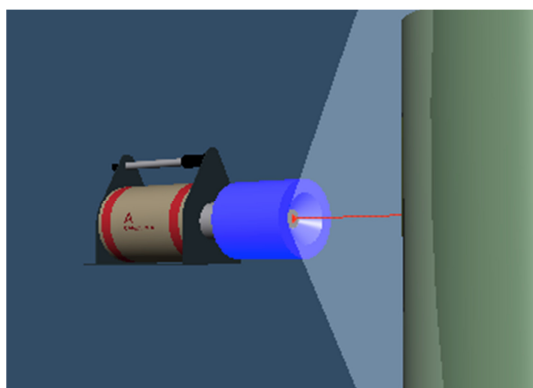


Figura 29. Ángulo sólido generado por el colimador de 90 ° a una distancia de 42 cm.

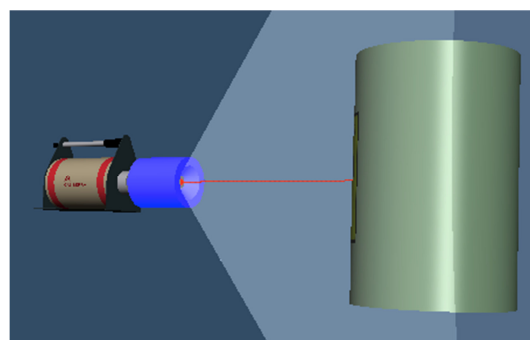


Figura 30. Ángulo sólido generado por el colimador de 90 ° a una distancia de 80 cm.

La distancia óptima de análisis se determinó en 50 cm, distancia que permite la medida integral del bulto y además se optimiza el tiempo de medida al estar el bidón próximo al detector, minimizándose por tanto la pérdida de eficiencia debido a la distancia y consiguiéndose una actividad mínima detectable más sensible.

Por tanto, se puede concluir que para el caso de bultos con materiales desclasificables las condiciones óptimas para la realización de la medida integral del bulto son las siguientes:

- Colimador de 90 °.
- Blindaje de Pb de 50 mm de espesor.
- Distancia bulto-detector 50 cm.

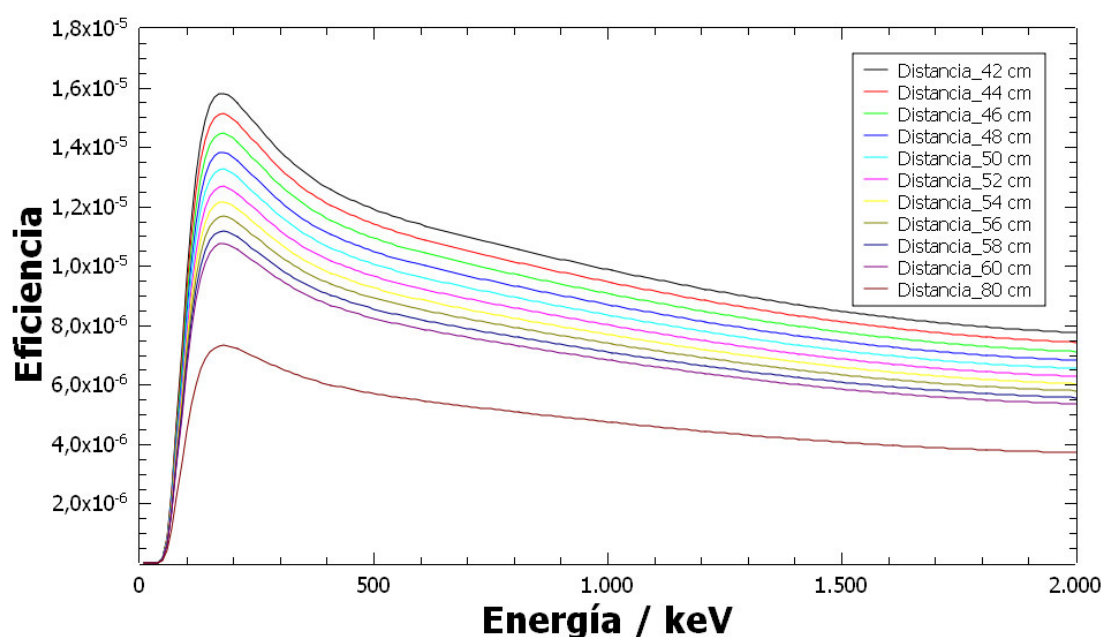


Figura 31. Influencia de la distancia bidón-detector en todo el intervalo de energías.

#### 4.3.2 Estudio de colimadores y absorbente en bultos RBMA

El estudio de la influencia del tipo de colimador así como del absorbente se realizó sobre un bidón real homogéneo de residuos radiactivos de baja y media actividad (RBMA) procedente de una central nuclear (CN).

El bulto RBMA fue fabricado por ENRESA en la CN de José Cabrera, que actualmente se encuentra en fase de desmantelamiento. El bulto homogéneo fue obtenido a partir de concentrados embebidos en cemento (nº de referencia DJ01720). El objetivo de ENRESA fue realizar un ejercicio financiado de intercomparación entre dos laboratorios que disponen de la misma metodología, CIEMAT y LVCR (Laboratorio de Verificación de la Calidad de los Residuos, El Cabril). La intercomparación de las medidas realizadas a un bulto conocido permite a su vez evaluar la capacidad analítica de los métodos utilizados por los laboratorios tanto por comparación frente a otros laboratorios similares, como por la evolución temporal de su participación. En el caso del CIEMAT, el bulto RBMA se caracterizó empleando la metodología presentada en este trabajo de investigación así como el sistema SGS ubicado en la IR-17 "Acondicionamiento de residuos sólidos radiactivos y almacenes de residuos radiactivos de baja actividad".

La instalación radiactiva IR-17 fue la instalación encargada de la recepción del bulto RBMA dadas las características radiológicas que presentaba el mismo, y la caracterización se realizó en la nave de la planta de tratamiento de residuos sólidos. Esta nave dispone de un sistema de depresión con respecto al exterior y mantiene unas condiciones de presión y temperatura ambiente óptimas para la respuesta de los equipos de espectrometría  $\gamma$ .

Los resultados se compararon con las medidas realizadas por el LVCR (El Cabril, ENRESA).

##### 4.3.2.1 Descripción del bulto

El bulto homogéneo RBMA presentaba un volumen nominal de 0,22 m<sup>3</sup> y una masa de 363 kg con una densidad  $\rho = 1,54 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ . La fecha de acondicionamiento fue 25-03-2015. Los radionucleidos que contenía eran <sup>60</sup>Co y <sup>137</sup>Cs.

Al ser un bulto RBMA su medida y transporte están condicionados por la legislación vigente, lo cual exige realizar el transporte del bulto desde la CN José Cabrera hasta el CIEMAT de acuerdo con el ADR "Acuerdo europeo sobre el transporte internacional de mercancías peligrosas por carretera" [11]. El bulto fue tipificado como bulto tipo B1.

Los datos radiológicos del bulto RBMA que se recibieron procedentes de la CN, fueron validados por el Servicio de Protección Radiológica del CIEMAT a la llegada del mismo el 13-04-2015 y son los que se recogen en la Tabla X.

Los datos radiológicos del bulto RBMA exigen la realización de la caracterización siguiendo los procedimientos operativos existentes en el CIEMAT, que permiten realizar todas las operaciones para la caracterización del bulto de manera segura desde el punto de vista de protección radiológica y de prevención de riesgos laborales.

Tabla X. Datos radiológicos del bulto RBMA emitidos por la CN y determinados por el CIEMAT.

<b>Bidón homogéneo RBMA CN José Cabrera</b>		
	<b>CN</b>	<b>SPR (CIEMAT)</b>
Tasa de Dosis en contacto	800 $\mu\text{Sv/h}$	800 $\mu\text{Sv/h}$
Tasa de Dosis a 1 m	90 $\mu\text{Sv/h}$	80 $\mu\text{Sv/h}$
Contaminación $\beta/\gamma$	< 3,7 $\text{Bq}\cdot\text{cm}^{-2}$	< 0,4 $\text{Bq}\cdot\text{cm}^{-2}$
Contaminación $\alpha$	< 0,37 $\text{Bq}\cdot\text{cm}^{-2}$	< 0,04 $\text{Bq}\cdot\text{cm}^{-2}$

De acuerdo con el Manual de Protección Radiológica del CIEMAT [114] y el principio de optimización de la protección radiológica basado en el criterio ALARA [115], se activó el procedimiento del CIEMAT correspondiente al permiso de trabajo con radiaciones, PTR. Un PTR se emite siempre que las condiciones radiológicas puedan variar o no sean suficientemente conocidas y en aquellos trabajos con riesgos de contaminación.

El PTR elaborado para la realización de este ensayo de intercomparación incluye como mínimo información concreta sobre:

- El trabajo y el lugar donde se va a realizar.
- Identificación de los operarios autorizados a realizar el trabajo.
- Identificación de la zona donde se realizará el trabajo y las condiciones radiológicas de la misma.
- Descripción del trabajo y duración estimada del mismo.
- Condiciones radiológicas existentes.
- Equipos y medios de protección personal a utilizar por los trabajadores.

#### 4.3.2.2 Parámetros de medida

Con el objeto de estudiar la influencia del colimador tanto en lo que respecta al ángulo de apertura así como al espesor del Pb, se realizaron ensayos con dos colimadores uno de 30 ° y otro de 90 ° de apertura, siendo los espesores de Pb utilizados de 25 y 50 mm para ambos colimadores. Los ensayos se realizaron a distancias comprendidas entre 2 y 4 m. A continuación se detallan las condiciones para la realización de las medidas con el detector de Ge haciendo uso del software ISOCS.

Como punto de partida se aplicaron las condiciones de medida establecidas para la caracterización de bidones con materiales residuales desclasificables y RBBA, siendo la distancia bulto-detector de 0,5 m estando el detector ubicado a mitad de altura del bidón y colimador de 90 ° con blindaje de Pb de 50 mm de espesor. El bulto se colocó sobre la plataforma de giratoria con una velocidad uniforme de giro=7 rpm (Figura 32). Sin embargo, las condiciones de medida aplicables a materiales residuales desclasificables no son extrapolables a residuos de baja y media actividad (RBMA); por ello fue necesario considerar que al presentar este bulto un nivel de actividad elevado, implica la llegada de una tasa de impulsos al detector muy alta que la electrónica no es capaz de procesar correctamente, originándose tiempos muertos superiores al 80 %. Por tanto fue necesario



efectuar un estudio de las condiciones de medida óptimas para la realización de la caracterización del bulto.

Mediante el estudio del colimador y del espesor de Pb del mismo se pretende obtener las condiciones de medida idóneas tanto para bultos que presenten elevada actividad como para bultos con recuentos bajos como es el caso de los bultos desclasificables tratados en este trabajo de investigación.

Los ensayos se realizaron con el detector de Ge caracterizado en fábrica para la utilización del software ISOCS y dos colimadores que tenían unos ángulos de apertura de 90 ° y 30 ° y con unos espesores de Pb de 50 y 25 mm respectivamente que fueron intercambiados en los dos colimadores (Figura 33 y Figura 34).



Figura 32. Bidón sobre plataforma de giro enfrentado al detector.

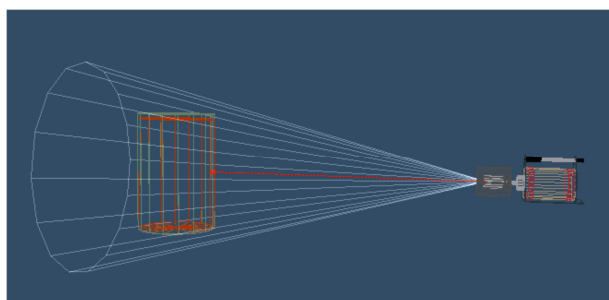


Figura 33. Detector con colimador de 30 ° a 2 m del bidón.

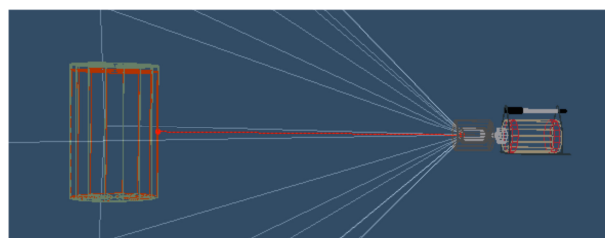


Figura 34. Detector con colimador de 90 ° a 2 m del bidón.

En la Tabla XI se recogen las variaciones en los parámetros estudiados con el fin de obtener las condiciones idóneas de medida. Los tiempos de medida oscilaron entre 60 y 600 s. Las distancias estudiadas fueron de 2, 3 y 4 m, las medidas se realizaron en dinámico con una velocidad constante de 7 rpm y en estático.

En total se realizaron 192 medidas que se corresponden a las variaciones reflejadas en la Tabla XI con los dos colimadores de 90 ° y de 30 ° de apertura, con los dos blindajes de Pb de 50 y de 25 mm de espesor, en modo estático para ocho ángulos distintos del bidón respecto del detector, en modo dinámico y para tres distancias bidón-detector diferentes.

Tabla XI. Combinaciones de variables para la realización de los diferentes ensayos sobre el bidón homogéneo RBMA procedente de la CN.

Colimador (°)	Tiempo (s)	Pb (mm)	Distancia (m)	Modo
30	600	50	4,00	Est. y Rot.
30	600	25	4,00	Est. y Rot.
30	300	50	3,00	Est. y Rot.
30	300	25	3,00	Est. y Rot.
30	300	50	2,00	Est. y Rot.
90	120	50	4,00	Est. y Rot.
90	120	25	4,00	Est. y Rot.
90	60	50	3,00	Rot.
90	60	25	3,00	Est. y Rot.
90	60	50	2,00	Rot.

En la Tabla XII se recogen los valores de tiempo muerto obtenidos con el colimador de 90 ° a diferentes distancias bulto-detector y con los dos espesores de blindaje utilizados. Los resultados obtenidos muestran como el incremento del espesor del blindaje de Pb del colimador de 25 mm a 50 mm no disminuyó el tiempo muerto del detector. Por otra parte, los tiempos muertos obtenidos para el colimador de 90 ° para las diferentes distancias ensayadas no bajaban en ningún caso del 10 %, esta situación provocó la desestimación de las medidas realizadas con el colimador de 90 °.

Tabla XII. Tiempo muerto obtenido para el colimador de 90 ° a diferentes distancias y con dos blindajes de Pb distintos.

Distancia (m)	Blindaje (mm)	Tiempo muerto (%)
1,00	50	65
2,00	50	30
3,00	50	17
3,00	25	17
4,00	50	10
4,00	25	10

En la Tabla XIII se recogen los valores de tiempo muerto obtenidos con el colimador de 30 ° para los diferentes estudios realizados, modificando las distancias bulto-detector y con blindajes de Pb de 50 y 25 mm de espesor.

Los tiempos de adquisición de medida con el colimador de 30 ° se establecieron para el intervalo de tiempo existente entre 60 y 600 s, obteniéndose unos tiempos muertos que estuvieron comprendidos entre el 5 y el 1,5 %.

Tabla XIII. Tiempo muerto obtenido para el colimador de 30 ° a diferentes distancias y con dos blindajes de Pb distintos.

Distancia (m)	Blindaje (mm)	Tiempo muerto (%)
2	50	4,8
3	50	1,5
4	50	2,4
3	25	2,2
4	25	3,6

El hecho de cambiar el colimador de 90 ° por uno de 30 °, por una parte obliga a incrementarse la distancia bulto-detector para poder realizarse la medida integral del bulto entero, y por otra parte hace que los tiempos muertos se reduzcan de forma apreciable evitándose la formación de apilamientos de impulsos significativo.

En la Figura 35 se ha representado el tiempo muerto en función de la distancia bulto-detector para los dos colimadores utilizados (90 ° y 30 °) y los dos espesores de Pb (25 mm y 50 mm). Se aprecia como el cambio en el espesor del blindaje del colimador de 90 ° no modifica el tiempo muerto obtenido. Además, el tiempo muerto obtenido con el colimador de 90 ° presenta unos valores muy altos para las distancias ensayadas. En el caso del colimador de 30 ° se produce una ligera disminución en el tiempo muerto al incrementarse el espesor del blindaje de Pb de 25 a 50 mm y los valores de tiempo muerto obtenidos en todos los casos son inferiores al 5 %.

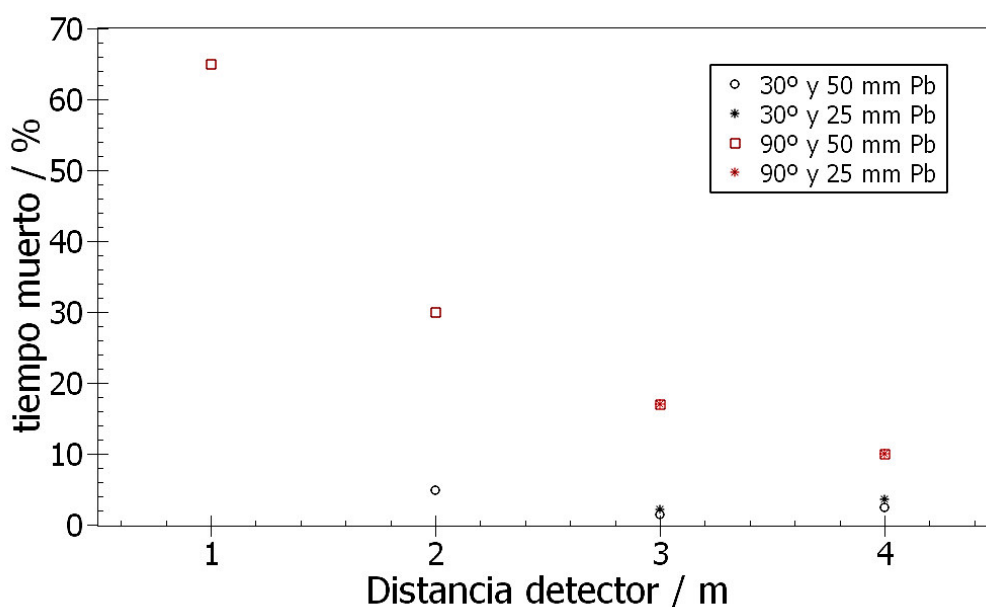


Figura 35. Tiempo muerto en función de la distancia bulto-detector para los colimadores de 90 ° y 30 ° y los dos blindajes de Pb de 25 mm y 50 mm.

Por otra parte, la determinación de la actividad del bidón de RBMA mediante la realización de ensayos a diferentes ángulos en estático sirvió para confirmar la homogeneidad del mismo.

El estudio de la homogeneidad del bidón se realizó mediante la toma de medidas en 8 posiciones distintas del bulto respecto al detector (0 °, 60 °, 90 °, 120 °, 180 °, 240 °, 270 ° y 300 °), y efectuando el ensayo en modo estático. La realización de dichas medidas sirvió para confirmar la homogeneidad del bulto y validar la metodología de caracterización de bultos homogéneos mediante rotación uniforme del bulto, lo que supone un importante ahorro de tiempo.

En las Tabla XIV a Tabla XVI se recogen los resultados obtenidos y analizados de la caracterización del bulto RBMA homogéneo de la central nuclear (CN) aplicando la metodología homogénea con rotación (ISOCS-HOMOG descrita en este trabajo de investigación) para las distancias bulto-detector de 2, 3 y 4 m respectivamente, con colimador de 30 ° y un blindaje de Pb de 50 mm. Además, en estas tablas también se resumen las medidas puntuales del bidón hechas en estático a diferentes ángulos del bidón respecto del detector, que sirven para validar la homogeneidad del bulto.

Tabla XIV. Caracterización de bulto homogéneo RBMA, mediante metodología homogénea con rotación (ISOCS-HOMOG) y en estático para ángulos de 0 °, 60 °, 90 °, 120 °, 180 °, 240 °, 270 ° y 300 °, con colimador de 30 ° y distancia bidón-detector de 2 m.

Técnica	<sup>60</sup> Co (MBq)	<sup>137</sup> Cs (MBq)
ISOCS-HOMOG	4,66 E+02 ± 2,70 E+01	4,73 E+02 ± 5,76 E+01
ISOCS-0 °	4,36 E+02 ± 2,50 E+01	4,43 E+02 ± 5,40 E+01
ISOCS-60 °	4,42 E+02 ± 2,54 E+01	4,60 E+02 ± 5,60 E+01
ISOCS-90 °	4,56 E+02 ± 2,62 E+01	4,73 E+02 ± 5,74 E+01
ISOCS-120 °	4,64 E+02 ± 2,70 E+01	4,85 E+02 ± 5,90 E+01
ISOCS-180 °	4,80 E+02 ± 2,74 E+01	4,81 E+02 ± 5,84 E+01
ISOCS-240 °	4,85 E+02 ± 2,78 E+01	4,91 E+02 ± 5,98 E+01
ISOCS-270 °	4,75 E+02 ± 2,72 E+01	4,80 E+02 ± 5,84 E+01
ISOCS-300 °	4,66 E+02 ± 2,66 E+01	4,82 E+02 ± 5,86 E+01

Las incertidumbres están expresadas para un factor de cobertura k = 2.

Tabla XV. Caracterización de bulto homogéneo RBMA, mediante metodología homogénea con rotación (ISOCS-HOMOG) y en estático para ángulos de 0 °, 60 °, 90 °, 120 °, 180 °, 240 °, 270 ° y 300 °, con colimador de 30 ° y distancia bidón-detector de 3 m.

Técnica	<sup>60</sup> Co (MBq)	<sup>137</sup> Cs (MBq)
ISOCS-HOMOG	4,74 E+02 ± 2,74 E+01	4,92 E+02 ± 6,06 E+01
ISOCS-0 °	4,88 E+02 ± 2,82 E+01	5,02 E+02 ± 6,18 E+01
ISOCS-60 °	4,77 E+02 ± 2,76 E+01	4,91 E+02 ± 6,04 E+01
ISOCS-90 °	4,69 E+02 ± 2,72 E+01	4,77 E+02 ± 5,88 E+01
ISOCS-120 °	4,63 E+02 ± 2,68 E+01	4,67 E+02 ± 5,76 E+01
ISOCS-180 °	4,49 E+02 ± 2,60 E+01	4,66 E+02 ± 5,74 E+01
ISOCS-240 °	4,61 E+02 ± 2,68 E+01	4,79 E+02 ± 5,90 E+01
ISOCS-270 °	4,70 E+02 ± 2,72 E+01	4,89 E+02 ± 6,02 E+01
ISOCS-300 °	4,79 E+02 ± 2,78 E+01	5,06 E+02 ± 6,22 E+01

Las incertidumbres están expresadas para un factor de cobertura k = 2.

Tabla XVI. Caracterización de bidón homogéneo RBMA, mediante metodología homogénea con rotación (ISOCS-HOMOG) y en estático para ángulos de 0 °, 60 °, 90 °, 120 °, 180 °, 240 °, 270 ° y 300 °, con colimador de 30 ° y distancia bidón-detector de 4 m.

Técnica	<sup>60</sup> Co (MBq)	<sup>137</sup> Cs (MBq)
ISOCS-HOMOG	4,74 E+02 ± 2,74 E+01	4,80 E+02 ± 5,90 E+01
ISOCS-0 °	4,58 E+02 ± 2,64 E+01	4,66 E+02 ± 5,72 E+01
ISOCS-60 °	4,66 E+02 ± 2,70 E+01	4,80 E+02 ± 5,88 E+01
ISOCS-90 °	4,69 E+02 ± 2,70 E+01	4,88 E+02 ± 5,98 E+01
ISOCS-120 °	4,80 E+02 ± 2,76 E+01	5,01 E+02 ± 6,14 E+01
ISOCS-180 °	4,87 E+02 ± 2,80 E+01	5,04 E+02 ± 6,18 E+01
ISOCS-240 °	4,88 E+02 ± 2,82 E+01	5,09 E+02 ± 6,24 E+01
ISOCS-270 °	4,85 E+02 ± 2,80 E+01	5,04 E+02 ± 6,18 E+01
ISOCS-300 °	4,79 E+02 ± 2,76 E+01	4,90 E+02 ± 6,02 E+01

Las incertidumbres están expresadas para un factor de cobertura k = 2.

En la Figura 36 y Figura 37 se ha representado la actividad del <sup>60</sup>Co y del <sup>137</sup>Cs respectivamente que presenta el bidón RBMA a las diferentes distancias estudiadas, con el colimador de 30 °, en estático a los diferentes ángulos analizados y en dinámico (con rotación).

El análisis de los datos presentados en las Tabla XIV a Tabla XVI (que se resumen en la Figura 36 y Figura 37) indica que los resultados de las medidas realizadas en estático son estadísticamente comparables entre sí y también que son coherentes con los resultados obtenidos con la metodología dinámica al estar solapados para un factor de cobertura de k = 2 (95 % de nivel de confianza). Así mismo, se demuestra que es posible determinar la actividad de un bulto homogéneo mediante varias medidas en estático a diferentes ángulos o en dinámico. La metodología dinámica tiene la ventaja de un ahorro en el tiempo de medida superior al 80 % respecto de la metodología de medida puntual. Por otra parte también se observa que los resultados presentan muy buena exactitud y precisión para todas las distancias estudiadas (2, 3 y 4 m).

Finalmente se adopta como distancia óptima la de 3 m, al ser una distancia intermedia que impide la saturación del detector cuando la actividad del bidón sea elevada, pero también limita la radiación procedente de la reflexión en las paredes del recinto donde se realiza la medida.

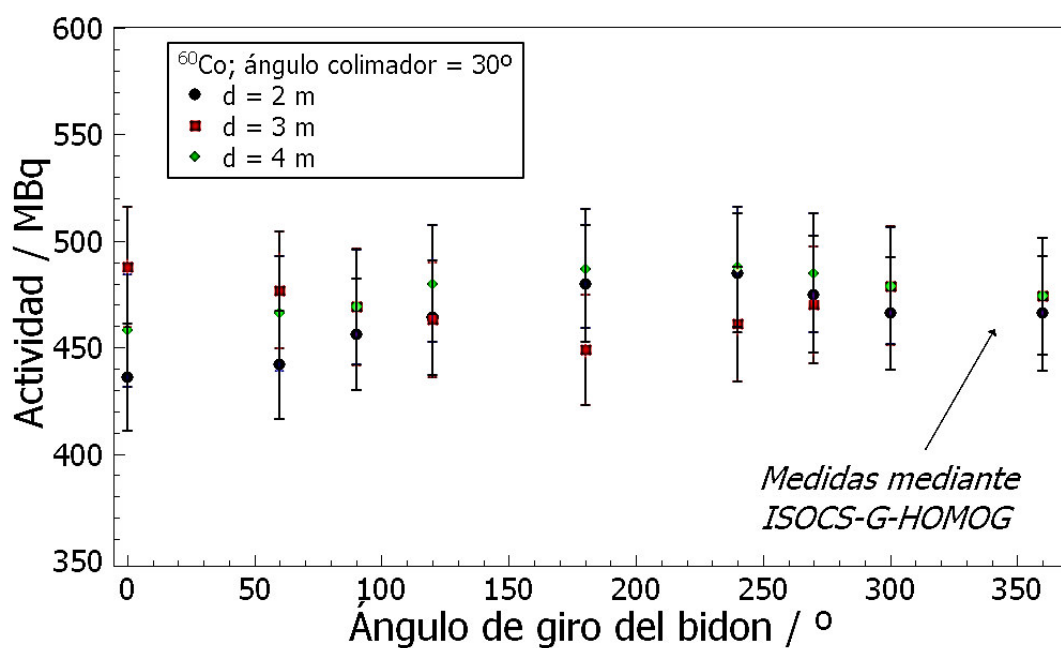


Figura 36. Actividad del  $^{60}\text{Co}$  del bulto determinada en estático y con rotación del bulto, colimador de  $30^\circ$  y a diferentes distancias.

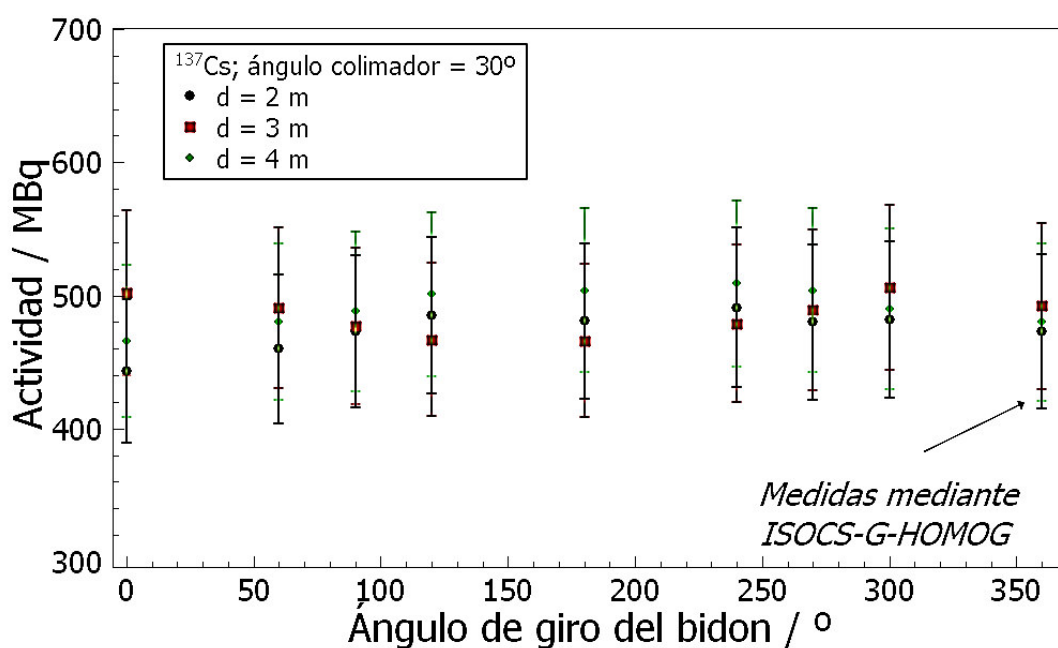


Figura 37. Actividad del  $^{137}\text{Cs}$  del bulto determinada en estático y con rotación del bulto, colimador de  $30^\circ$  y a diferentes distancias.

#### 4.3.2.3 Estudio del absorbente

Por otra parte, se comprobó experimentalmente el efecto que supone la interposición de un absorbente entre bulto y detector en la atenuación de la radiación que llega al detector.

Para la realización de este estudio se interpuso una pared de ladrillos de Pb de 50 mm de espesor entre los detectores y el bulto, procediendo a continuación a su caracterización (Figura 38).

Se verificó experimentalmente que la atenuación en la radiación se producía fundamentalmente sobre la radiación menos energética, en este caso concreto sobre el  $^{137}\text{Cs}$  frente al  $^{60}\text{Co}$ .



Figura 38. Detectores con blindajes de Pb y pared de Pb interpuesta entre los dos detectores.

#### 4.3.2.4 Establecimiento de las condiciones idóneas de medida

Los resultados obtenidos con el colimador de 30 ° en la realización de los ensayos con variación de la distancia, se observa que no hay influencia en la determinación de la actividad. Como ya se ha comentado, la elección de una distancia intermedia se considera la adecuada, ya que distancias cortas ocasionarían saturaciones del equipo que originarían elevados tiempos muertos. Sin embargo, no es conveniente una separación excesiva ya que se mediría la radiación reflejada en las paredes del recinto donde se realiza la medida.

Los resultados obtenidos de este estudio permiten establecer que en el caso de bultos con actividad elevada el colimador más adecuado es el de 30 °, mientras que para materiales desclasificables es el de 90 °.

Por tanto se puede concluir que para bultos con actividades mayores que el intervalo de actividad de los materiales desclasificables, las condiciones óptimas para la realización de la medida integral del bulto son las siguientes:

- Colimador de 30 °.
- Blindaje de Pb de 50 mm de espesor.
- Distancia bulto-detector 3 m.
- Tiempo de adquisición de medida 300 s.
- Medida realizada con movimiento de rotación uniforme (3-7 rpm).

Este estudio es extrapolable a bultos con matriz heterogénea.

### 4.3.3 Estudio de la composición de la matriz

La influencia de la composición de la matriz en bidones homogéneos, se estudió mediante la determinación de la eficiencia para los siguientes compuestos: CaO, SiO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> y MgO.

Posteriormente se definió una composición tipo de la matriz basada en los compuestos mayoritarios que presenta el cemento, y que fue la que se aplicó a continuación en la caracterización de los bidones.

El hecho de seleccionar una matriz basada en los compuestos mayoritarios que presenta el cemento, fue debido por una parte a que el cemento se utiliza como primera barrera de contención en el acondicionamiento de los bidones con residuos radiactivos y por otra parte, por ser el principal constituyente de los escombros obtenidos en el desmantelamiento de instalaciones.

El efecto de la composición de la matriz es un factor determinante en la caracterización de muestras mediante espectrometría  $\gamma$ , debido a los fenómenos de atenuación que tienen lugar sobre todo en emisores  $\gamma$  de baja energía, como por ejemplo: <sup>210</sup>Pb (46,5 keV), <sup>234</sup>Th (62,29 keV) y <sup>241</sup>Am (59,54 keV) [116-120].

#### 4.3.3.1 Compuestos en estado puro

Los compuestos que se utilizaron para analizar la influencia de la composición en la determinación de eficiencias, fueron los que se encuentran mayoritariamente en la composición del cemento [121], esto es, CaO, SiO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> y MgO. En este estudio se varió la composición de la matriz del bidón para que estuviera constituida por un solo compuesto de los cinco estudiados, y para comprobar cuál era el más influyente en la pérdida de eficiencia del detector.

En la Figura 39 se ha representado la eficiencia obtenida mediante ISOCS en función de la energía para los distintos compuestos estudiados (CaO, SiO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> y MgO). El comportamiento de la eficiencia en función de la energía es el esperado, apreciándose que para energías inferiores a 200 keV la composición tiene una influencia mayor que para energías superiores a 200 keV, al ser la interacción de la radiación con la materia a bajas energías debida principalmente al efecto fotoeléctrico [22, 106].

Por otra parte, se observa que las composiciones de Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> y de CaO son las que más afectan a la pérdida de la eficiencia debido a su elevado coeficiente de atenuación másico [122].

En la Figura 40 se observa como para una energía de 120 keV la eficiencia obtenida para un bulto con una matriz compuesta de Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> es un 50 % menor que si la matriz fuera de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, o del MgO o de SiO<sub>2</sub>. Por otra parte, cuando la matriz del bulto es de CaO, la eficiencia obtenida a esa misma energía de 120 keV es en torno a un 30 % menor que la del Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, la del MgO y la del SiO<sub>2</sub>.



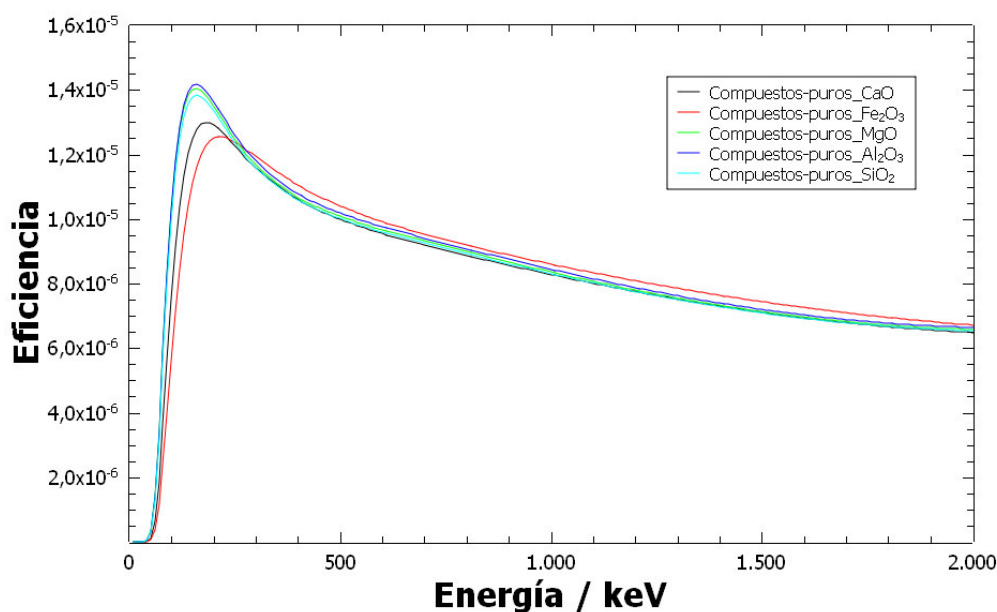


Figura 39. Curva de eficiencia en función de la energía para los diferentes compuestos utilizados en el estudio de la influencia de la composición.

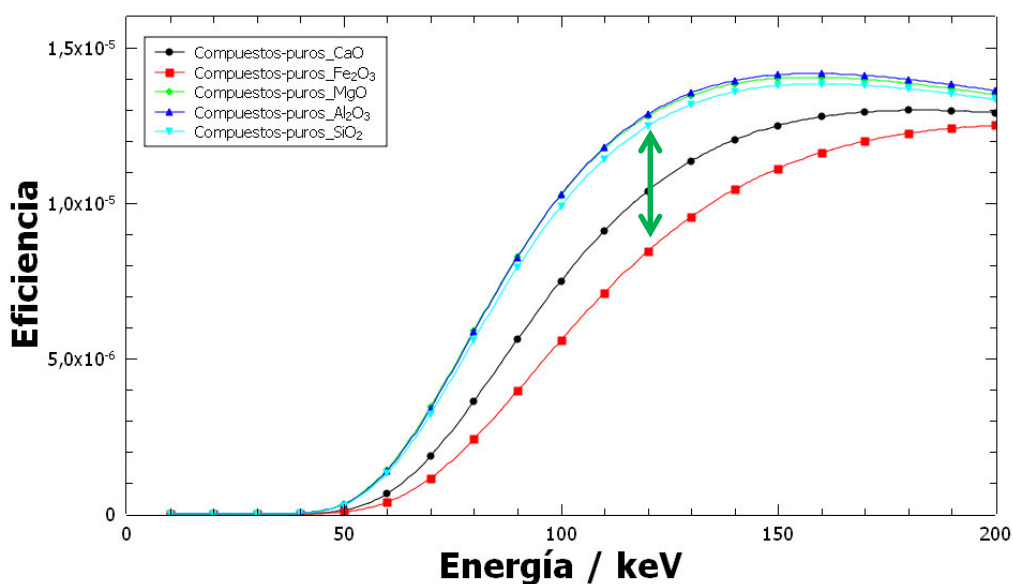


Figura 40. Influencia de la composición en la eficiencia a bajas energías.

Por tanto se puede concluir que existe una dependencia de la eficiencia con la composición de la matriz, que se produce principalmente a bajas energías, donde la interacción de la radiación con la materia es debida fundamentalmente al efecto fotoeléctrico. Así mismo, el Fe y Ca son los elementos más influyentes en la pérdida de eficiencia para energías inferiores a 200 keV, debido a su mayor coeficiente de atenuación másico originado por la dependencia con respecto al número atómico. El Fe es el elemento con mayor número atómico de los estudiados, seguido del Ca. El Si, Al y Mg tienen números

atómicos muy próximos, es por ello que en estos últimos elementos no se aprecia variaciones significativas en la eficiencia obtenida para las matrices de  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  y  $\text{MgO}$ .

#### 4.3.3.2 Cementos Portland

El cemento Portland es el más ampliamente utilizado en construcción y por tanto el más habitual en los materiales obtenidos en los procesos de desmantelamiento. En este estudio, se ha analizado la influencia de la composición de cinco tipos de cemento Portland, en la pérdida de eficiencia del detector.

El cemento Portland es un cemento hidráulico producido mediante la pulverización del clínker, compuesto esencialmente de silicatos de calcio hidráulicos que contiene generalmente una o más de las formas de sulfato de calcio como una adición durante la molienda. Los cinco tipos de cemento Portland estudiados fueron los siguientes [121]:

- Tipo I: normal, es el cemento Portland destinado a obras en general, cuando en las mismas no se especifique la utilización de otro tipo. Libera más calor de hidratación que otros tipos de cemento (utilización en edificios, estructuras industriales, conjuntos habitacionales).
- Tipo II: de moderada resistencia a los sulfatos, es el cemento Portland destinado a obras en general y obras expuestas a la acción moderada de sulfatos o donde se requiera moderado calor de hidratación (utilización en puentes, tuberías).
- Tipo III: alta resistencia inicial a 3 y 7 d.
- Tipo IV: se requiere bajo calor de hidratación, no deben producirse dilataciones durante el fraguado (utilización en presas).
- Tipo V: alta resistencia a la acción concentrada de los sulfatos (utilización en plataformas marinas).

Los resultados obtenidos en los estudios de investigación realizados con los cinco tipos de cementos Portland se presentan en la Tabla XVII.

Tabla XVII. Composiciones de los distintos tipos de cemento Portland.

%	Cemento tipo I	Cemento tipo II	Cemento tipo III	Cemento tipo IV	Cemento tipo V
O <sub>2</sub>	33,44	35,04	34,54	35,42	35,26
Al	3,09	2,44	2,69	2,33	1,80
Si	10,47	10,55	9,50	11,35	11,44
Ca	51,18	49,0	51,44	48,15	49,44
Fe	1,83	2,97	1,83	2,74	2,06

En la Figura 41 se ha representado la eficiencia en función de la energía para bidones simulando matrices con los cinco cementos Portland ensayados, observándose que no hay diferencias significativas entre las eficiencias obtenidas para los diferentes cementos. Los resultados son coherentes con los obtenidos en el apartado anterior, donde se comprobó que el  $\text{CaO}$  y  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  eran los compuestos más influyentes en la autoabsorción. La variación

de estos compuestos ( $\text{CaO}$  y  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ) en los cinco cementos Portland ensayados es mínima, y por tanto no se aprecia su influencia en la determinación de la eficiencia.

La eficiencia obtenida mediante ISOCS para los distintos tipos de cemento Portland es independiente de la composición de los mismos dentro de las incertidumbres asociadas al cálculo.

Los dos estudios realizados sobre la composición de la matriz (compuestos en estado puro y los cementos Portland), permitieron establecer una composición tipo para bidones con matriz de cemento, constituida por un 65 % de  $\text{CaO}$ , 25 % de  $\text{SiO}_2$ , 6 % de  $\text{Al}_2\text{O}_3$  y 4 % de  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ . Esta composición tipo, presenta unos porcentajes de los diferentes compuestos que son representativos de la composición de los cementos y es la que se va aplicar en la caracterización de bidones homogéneos.

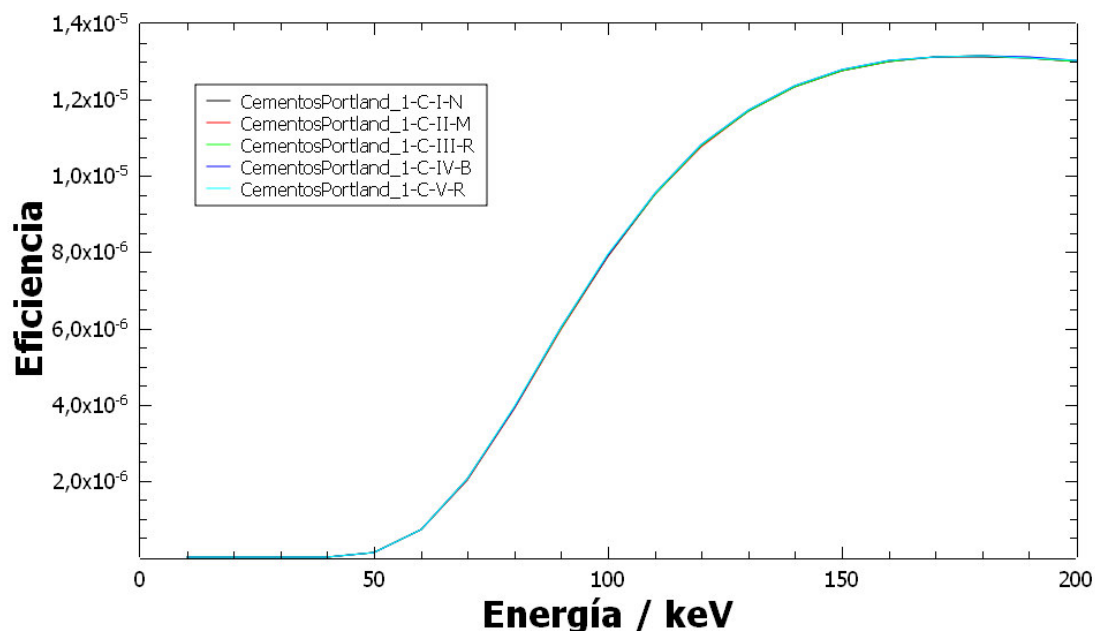


Figura 41. Variaciones en la composición de los cementos Portland y su influencia en la eficiencia.

#### 4.3.4 Influencia de la densidad de la matriz

El estudio de la influencia de la densidad de la matriz se realizó para la composición tipo establecida en el apartado anterior. El intervalo de densidades analizado estuvo comprendido entre  $0,1$  y  $2,5 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ , con incrementos de  $0,1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ .

En la Figura 42 se ha representado la eficiencia en función de la energía para el intervalo de densidades comprendido entre  $0,1$  y  $1,2 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ , siendo el comportamiento análogo para el resto de densidades estudiado. En la gráfica obtenida se observa que la densidad afecta a la eficiencia en todo el intervalo de energías, teniendo una mayor influencia para energías inferiores a  $200 \text{ keV}$  [117, 118, 123].

Esto significa que para densidades superiores a  $1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ , la atenuación afecta prácticamente por igual a todas las energías. Sin embargo, para densidades inferiores a  $1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  se aprecia la influencia de la densidad en la atenuación para las diferentes energías, siendo dicho efecto más marcado a bajas energías.

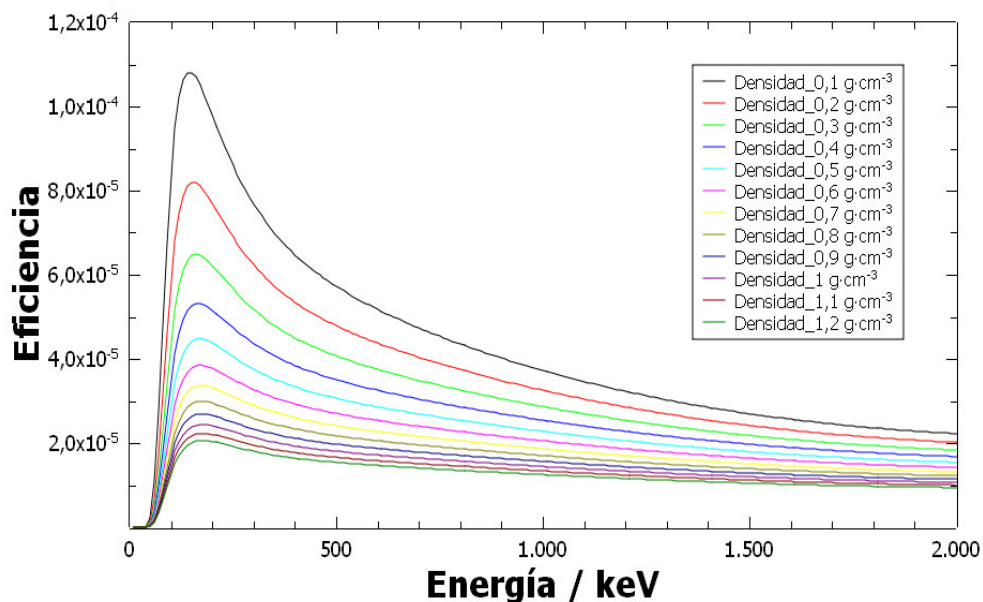


Figura 42. Eficiencia en función de la energía para distintas densidades.

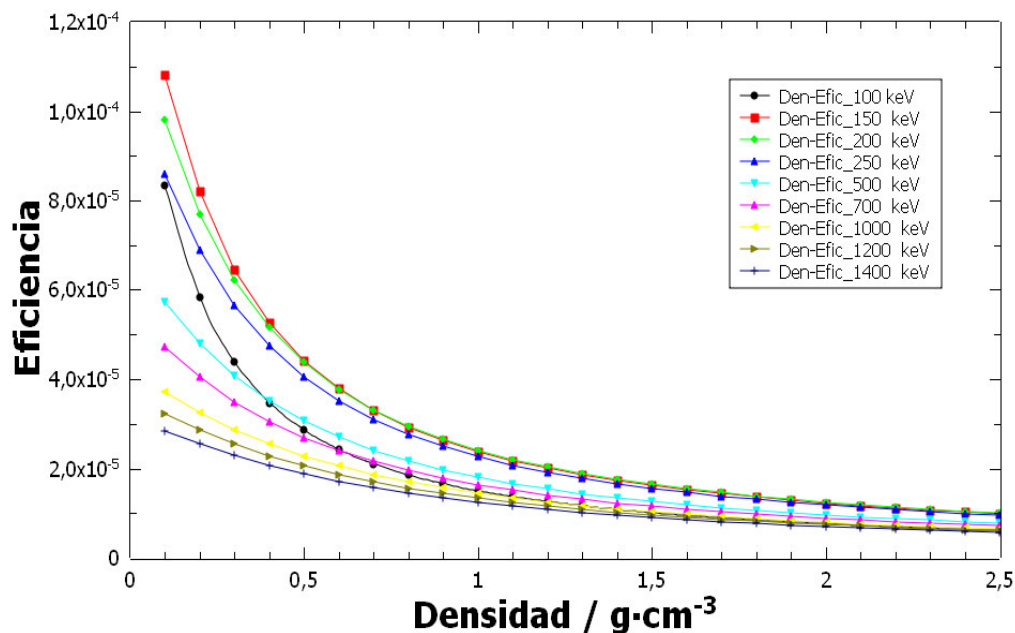


Figura 43. Eficiencia en función de la densidad para distintas energías.

La variación de la eficiencia en función de la densidad desde 0,1 a 1,2 g·cm<sup>-3</sup>, origina un incremento en la actividad mínima detectable del <sup>137</sup>Cs de un 71 %, siendo por tanto la densidad el factor más influyente de todos los estudiados en la variación de eficiencia.

La densidad afecta a la eficiencia en todo el intervalo de energías, debido al proceso de autoabsorción que tiene lugar, producido por el efecto fotoeléctrico, efecto Compton así como por la formación de pares. Siendo evidente la influencia de la densidad sobre la eficiencia principalmente a energías bajas y medias.

#### 4.3.5 Comparación de la eficiencia matemática y experimental

Para la realización de este ensayo se utilizó un bidón de acero inoxidable de 0,22 m<sup>3</sup>, con matriz de cemento de densidad  $\rho = 1,91 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  y una actividad de <sup>152</sup>Eu de  $51,6 \pm 2,6 \text{ MBq}$  con fecha de referencia 01-02-1989.

La eficiencia matemática se simuló para la composición tipo establecida en estudios anteriores, fijando la distancia bulto-detector en 50 cm y utilizando el colimador de 90 ° con un blindaje de 50 mm de Pb.

Los ensayos se efectuaron:

- En estático. Se realizaron medidas en cuatro posiciones distintas (IRB-1, IRB-2, IRB-3 y IRB-4), obtenidas mediante la aplicación de 3 rotaciones sucesivas de 90 ° sobre el bidón.
- En dinámico. Mediante rotación uniforme del bidón (IRB-G) a 7 rpm. Los tiempos de medida fueron de 900 s para todos los ensayos realizados.

En la Figura 44 se muestra los resultados de la comparación de la eficiencia obtenida mediante ISOCS frente a la eficiencia experimental para el ensayo con el bidón en estático (IRB-3).

En la Figura 45 se muestra los resultados de la comparación de la eficiencia obtenida mediante ISOCS frente a la eficiencia experimental para el ensayo con el bidón con rotación uniforme (IRB-G).

Se observa concordancia entre la eficiencia obtenida con ISOCS y la eficiencia experimental en ambos casos, estático y dinámico (Figura 44 y Figura 45).

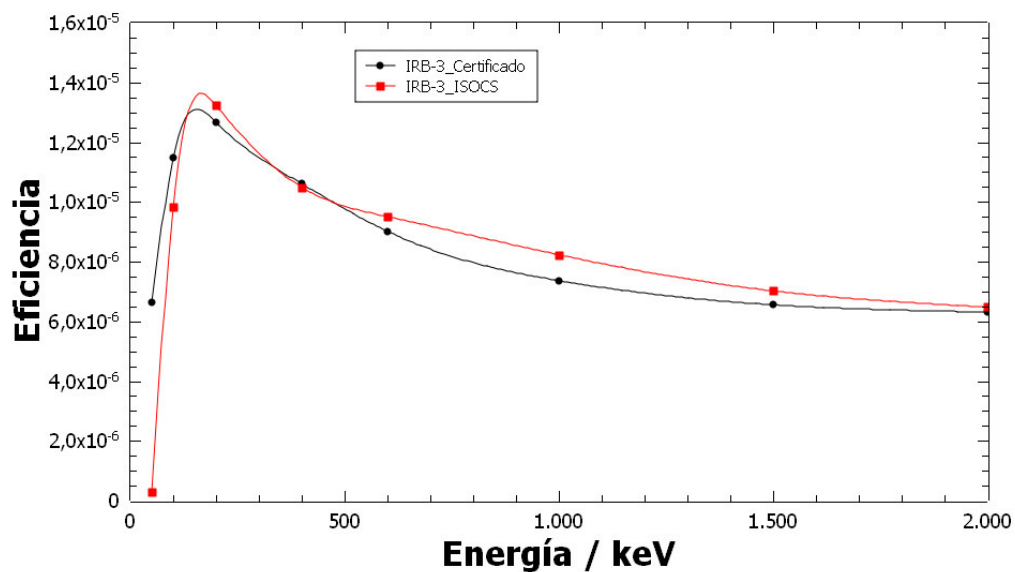


Figura 44. Eficiencia experimental (certificado) y determinada con ISOCS para bidón homogéneo en estático, en uno de los ángulos de medida (IRB-3).

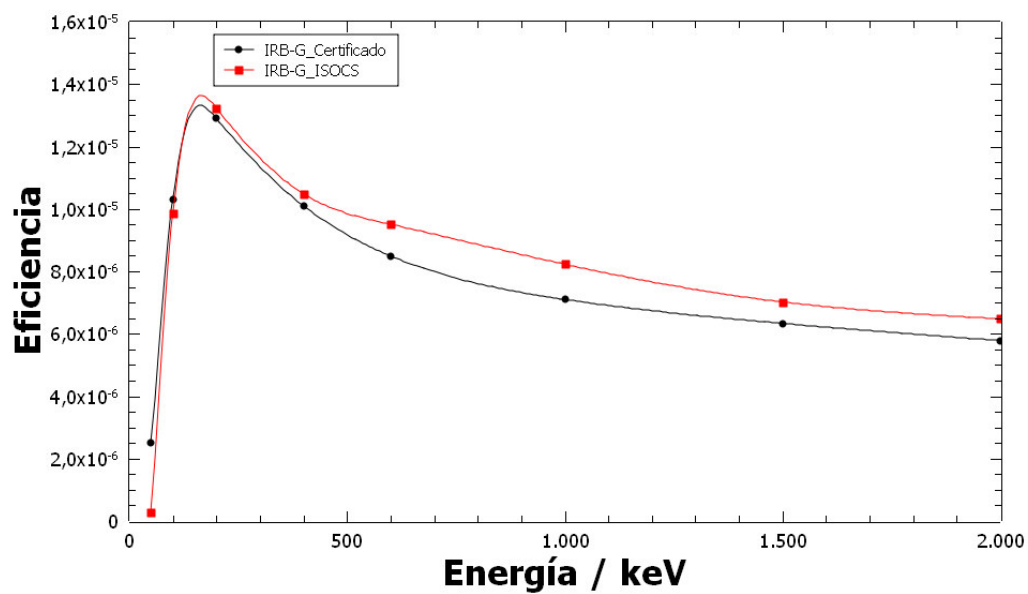


Figura 45. Eficiencia experimental (certificado) y determinada con ISOCS para bidón homogéneo con rotación uniforme a 7 rpm.

#### 4.3.6 Conclusiones parciales

Las condiciones óptimas de medida de un bulto se ven influenciadas por la actividad que presenta dicho bulto.

Cuando la actividad del bulto sea tal que se encuentre fuera del intervalo de actividad de los materiales desclasificables, es decir se trate de residuos de baja y media actividad (RBMA), en este caso las conclusiones a las que se ha llegado son las siguientes:

- La caracterización de bultos con RBMA haciendo uso del colimador de 90 ° originó unos tiempos muertos elevados (superiores al 5 %) para las distancias bulto-detector estudiadas (1, 2, 3 y 4 m). Además la modificación del espesor del blindaje de Pb del colimador de 25 a 50 mm, no supuso modificación en el tiempo muerto. Por tanto para la caracterización de bultos con RBMA se utilizará el colimador de 30 °.
- La modificación en el espesor del blindaje de Pb de 25 a 50 mm cuando se hace uso del colimador de 30 °, reduce el tiempo muerto. Además, los tiempos muertos obtenidos para las diferentes distancias ensayadas (2, 3 y 4 m) presentaban unos valores inferiores al 5 %.
- La distancia óptima bulto-detector para realizar la caracterización se estableció en 3 m, realizando la medida integral del bulto completo.

Cuando la actividad del bulto se encuentre dentro del intervalo de actividad de los materiales desclasificables y RBBA, en este caso las conclusiones a las que se ha llegado son las siguientes:

- La caracterización de bultos con materiales desclasificables se realizará haciendo uso del colimador de 90 ° con un blindaje de Pb de 50 mm de espesor.
- La influencia del factor distancia bulto-detector afecta a la eficiencia en todo el intervalo de energías, apreciándose que un aumento de la distancia bulto-detector da lugar a un rápido decrecimiento de la eficiencia. La distancia óptima de trabajo se estableció en 50 cm, distancia que permite la medida integral del bidón, minimizándose la pérdida de eficiencia debido a la distancia y obteniéndose una actividad mínima detectable más sensible.

De forma general, para todos los bultos tanto de materiales desclasificables como residuos de baja y media actividad (RBMA):

- Existe una dependencia de la eficiencia con la composición de la matriz, que se produce principalmente a bajas energías, donde la interacción de la radiación con la materia es debida fundamentalmente al efecto fotoeléctrico. Así mismo, el Fe y Ca son los elementos más influyentes en la pérdida de eficiencia para energías inferiores a 200 keV, debido a su mayor coeficiente de atenuación másico originado por la influencia de su número atómico Z.
- La eficiencia obtenida mediante ISOCS para los distintos tipos de cemento Portland es independiente de la composición de los mismos dentro de las incertidumbres asociadas al cálculo.

- La densidad afecta a la eficiencia en todo el intervalo de energías, debido al proceso de autoabsorción que tiene lugar, producido por el efecto fotoeléctrico, efecto Compton así como por la formación de pares; siendo evidente la influencia de la densidad sobre la eficiencia a energías bajas y medias. Además la densidad es el factor más influyente de todos los estudiados en la variación de eficiencia.
- La buena concordancia entre la eficiencia obtenida con ISOCS y la eficiencia experimental tanto en los ensayos estáticos como en el dinámico, permiten concluir que la caracterización de bultos homogéneos se realizará mediante rotación uniforme.

#### 4.4 Caracterización de bultos heterogéneos

La bibliografía existente sobre la caracterización de bidones con residuos radiactivos mediante espectrometría  $\gamma$  con técnicas no destructivas, considera habitualmente la aproximación de que tanto la matriz como la actividad están uniformemente distribuidas en el bidón [76, 102]. Sin embargo, esta condición no se suele cumplir en bidones con residuos heterogéneos, por lo que se comenten errores en el ensayo debidos al desconocimiento de la distribución de la actividad en el bidón así como a la falta de homogeneidad de la matriz.

Como se comentó anteriormente, las distintas técnicas que se utilizan para la caracterización de bultos con residuos radiactivos heterogéneos son la tomografía (TGS) [74, 81, 82, 124], la técnica segmentada (SGS) [54, 69, 75, 77, 125, 126] y las técnicas que hacen uso de varios detectores [72, 75]. Todas estas técnicas pretenden aumentar la exactitud en la determinación de la actividad, que está influenciada por la imprecisión en la localización de la fuente. Sin embargo, la mayoría de estas técnicas tienen un alto coste económico y requieren elevados tiempos de ensayo.

Por otra parte, existen métodos basados en códigos matemáticos que posibilitan de una manera sencilla la determinación de la actividad de este tipo de bultos [39-41, 116, 127]. Estos modelos matemáticos, permiten simular correctamente la dependencia de la eficiencia con la distribución de la fuente, lo que conlleva un aumento en la exactitud de los valores de la actividad [43, 56, 57].

En este apartado se presentan los resultados obtenidos en la caracterización de bidones heterogéneos mediante espectrometría  $\gamma$  *in situ* utilizando el código de Canberra ISOCS. El software utilizado fue *Geometry Composer*, mediante el cual se definió una geometría determinada; para el caso concreto de bidones heterogéneos se seleccionó el modelo *Complex Pipe* (Figura 46), que se aplicó a varias disposiciones. A continuación se especificaron los tipos de materiales, con sus densidades así como los valores dimensionales del bidón y de la fuente (Figura 47). Posteriormente se seleccionó el colimador, el elegido fue uno de Pb con un espesor de 50 mm y un ángulo de apertura de 90 ° (Figura 48).

Esta modelación se aplicó a varias distribuciones de la fuente de referencia utilizada en el bidón para la realización de los diferentes ensayos, y se calculó la eficiencia para dichas distribuciones, determinándose finalmente la actividad de la fuente.



Los estudios se realizaron sobre bidones de  $0,22 \text{ m}^3$  de acero inoxidable, que presentaban matrices homogéneas y cuya actividad no estaba homogéneamente distribuida en los mismos. La distancia bulto-detector se estableció en 50 cm con el detector siempre posicionado a mitad de altura del bidón (Figura 49). La densidad del bidón fue variable en función de la matriz utilizada;  $\rho_{\text{aire}} = 0,0013 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ,  $\rho_{\text{arilita}} = 0,54 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  y  $\rho_{\text{arena}} = 1,3636 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ .

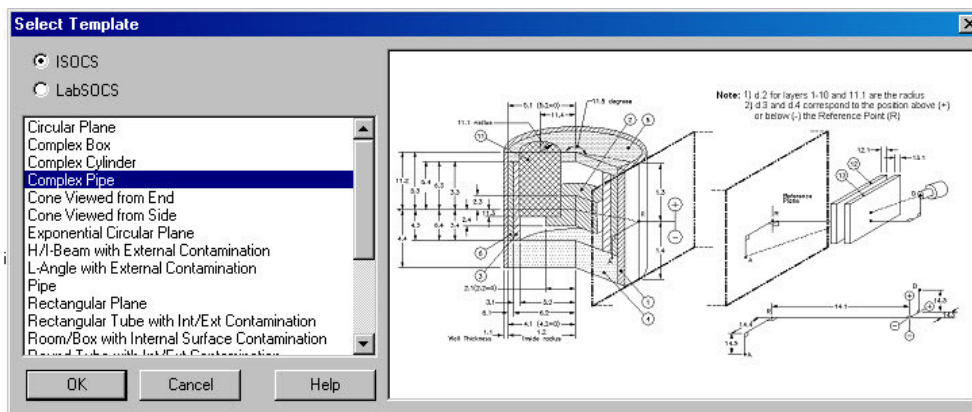


Figura 46. Pantalla de selección de geometría: *Complex Pipe*.

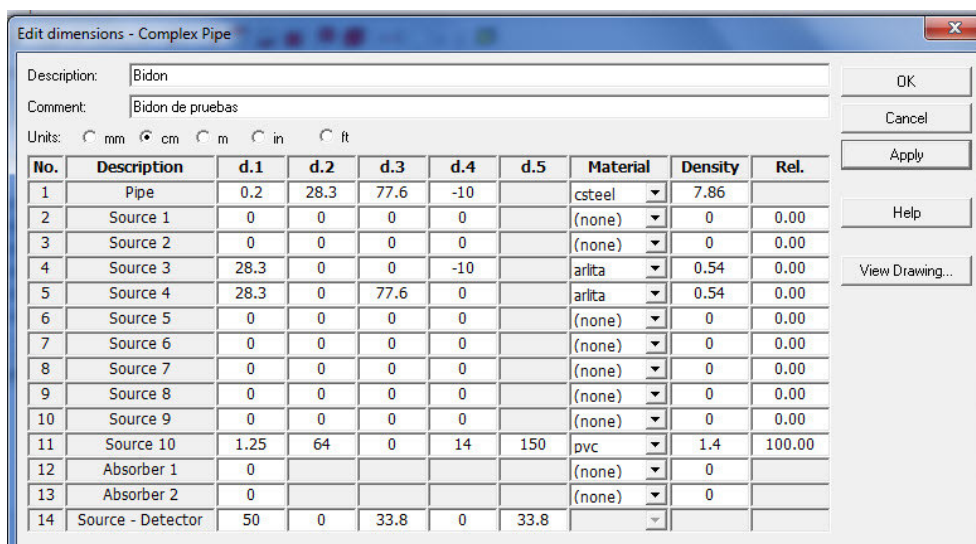


Figura 47. Pantalla de introducción de datos dimensionales y materiales.

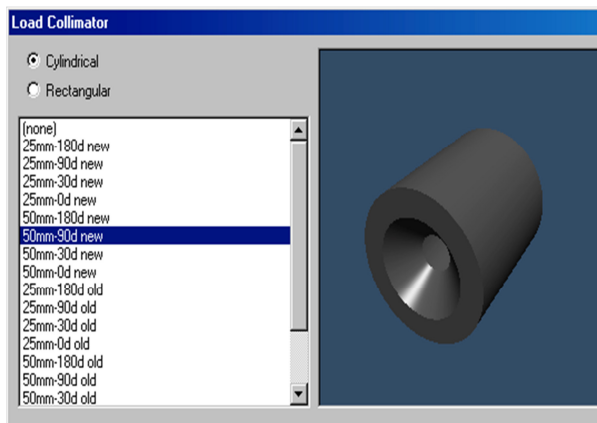


Figura 48. Plantilla de selección del colimador.

Como fuente de referencia se utilizó una fuente cilíndrica de  $^{152}\text{Eu}$  formada por un tubo de PVC de 96 cm de largo y 3,2 cm de diámetro, relleno con celulosa donde se depositó una disolución de referencia de  $^{152}\text{Eu}$ , con una actividad de  $22,7 \pm 0,9 \text{ MBq}$  a fecha 22-06-1999, siendo las dimensiones de la parte activa de la fuente de 64 cm de largo y 2,5 cm de diámetro.

Los ensayos realizados para la determinación de la actividad de bidones heterogéneos haciendo uso de las curvas de eficiencia obtenidas mediante ISOCS, fueron los siguientes:

- Determinación de la actividad realizando la medida del bidón en estático (para diferentes matrices y ubicando la fuente en distintas disposiciones espaciales).
- Determinación de la actividad realizando la medida del bidón en dinámico y con ponderación en función de la distancia de la fuente al detector (para diferentes matrices y ubicando la fuente en distintas disposiciones espaciales).

Las medidas en estático del bidón se realizaron para comprobar la exactitud y precisión del código matemático utilizado.

Los bidones utilizados en este estudio contenían cinco tubos huecos verticales de 3,5 cm de diámetro, colocados en las siguientes posiciones radiales: P1 a 27 cm del centro, P2 a 21 cm, P3 a 14 cm, P4 a 7 cm y P5 en el centro del bidón (Figura 50). Estos tubos se usaron para ubicar la fuente de referencia dentro del bidón y realizar la calibración en eficiencias. Los ensayos se realizaron para tres tipos de matrices distintas: aire, arlita y arena.

La disposición de los tubos en el bidón se eligió de tal manera que la fuente recorriese toda la distancia radial del bidón, es decir desde el borde exterior hasta el centro del bidón, de forma que las variaciones radiales de la posición de la fuente, conjuntamente con las diferentes disposiciones angulares obtenidas por rotación del bidón con respecto al detector, originasen un conjunto de posiciones de la fuente que sirvieran para promediar la respuesta del sistema en el caso de residuos no homogéneos.

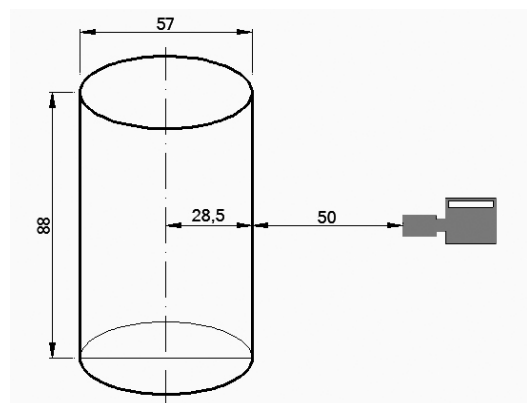


Figura 49. Representación esquemática de la disposición del bidón con respecto al detector.

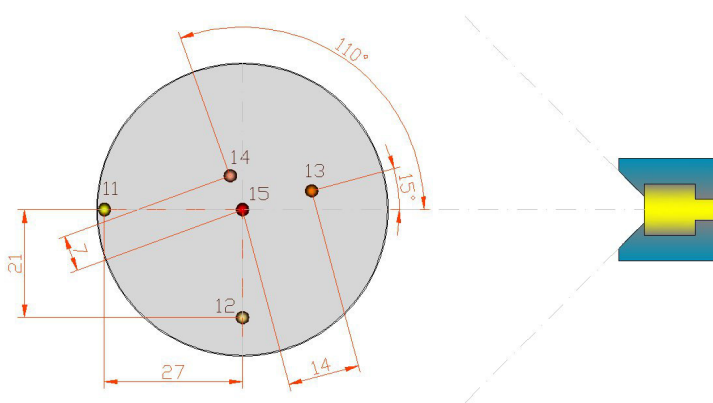


Figura 50. Disposiciones radiales de los cinco tubos dentro del bidón para una disposición angular concreta.

#### 4.4.1 Determinación de la actividad en estático

Los ensayos en estático se realizaron para un conjunto de veinte posiciones de la fuente en el bidón, que se obtuvieron a partir de una disposición angular inicial A1 (Figura 51 a), que contempla cinco posiciones radiales distintas de la fuente (P1 a 27 cm del centro, P2 a 21 cm, P3 a 14 cm, P4 a 7 cm y P5 en el centro del bidón), y que mediante tres giros sucesivos de 90 ° del bidón respecto al detector, originan otras tres disposiciones angulares (Figura 51 b, c y d), con cinco posiciones de la fuente cada una de ellas.

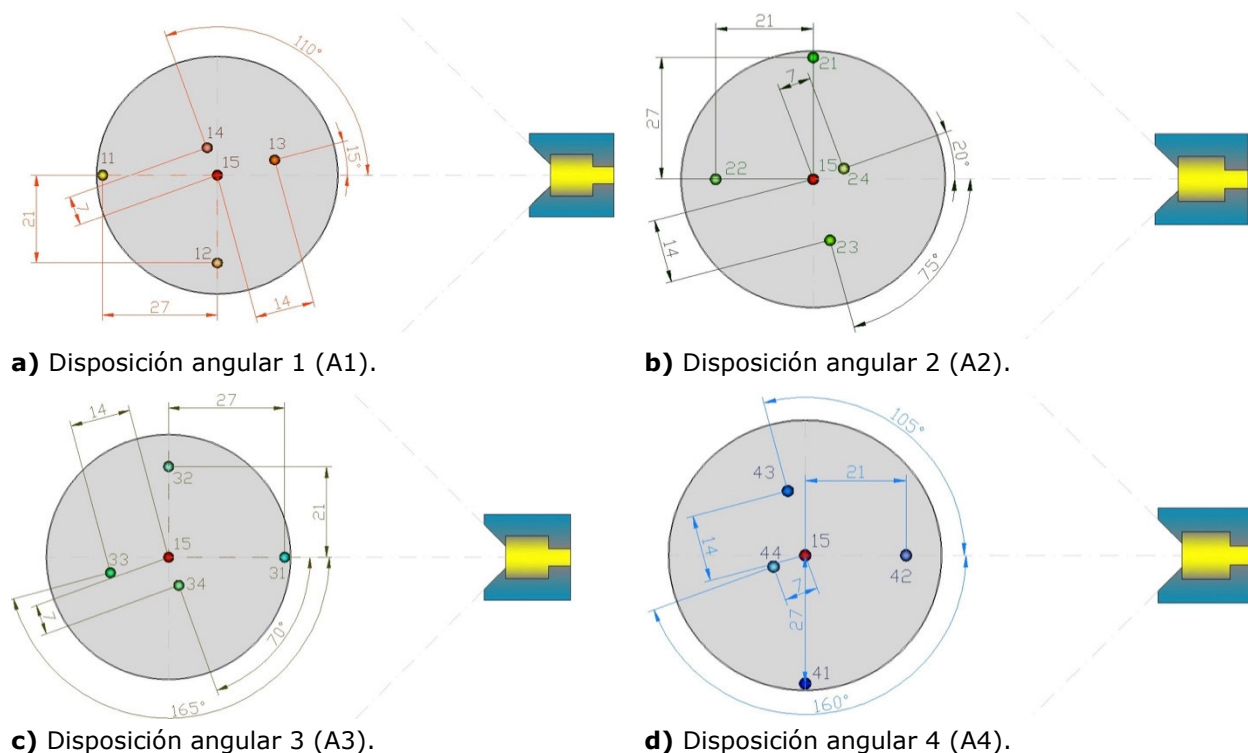


Figura 51. Conjunto de las cuatro disposiciones angulares (a, b, c y d) obtenidas mediante giros sucesivos de 90°.

En total se generan veinte posiciones para la fuente (diecisiete de ellas distintas), distribuidas en cuatro disposiciones angulares, de tal forma que cada posición radial tiene cuatro disposiciones angulares. En la Tabla XVIII, se presentan todas las posiciones, ángulos y matrices estudiadas, donde A corresponde al ángulo y P a la posición de la fuente. Las densidades de las matrices usadas fueron las siguientes:  $\rho_{\text{aire}} = 0,0013 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ,  $\rho_{\text{arlita}} = 0,54 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  y  $\rho_{\text{arena}} = 1,3636 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ .

Por otra parte, también se aprecia como estos valores medios de actividad para las matrices de arlita y arena, presentan una dispersión mayor que el de la matriz de aire. La elevada dispersión es debida al proceso de autoabsorción que tiene lugar, que es más complejo según aumenta la densidad de la matriz estudiada [117, 120] y también debido a la heterogeneidad que presenta la matriz que se ha supuesto inicialmente homogénea [128, 129].

Tabla XVIII. Relación de ángulos-posiciones analizados para las matrices de aire, arlita y arena.

Posición	Aire		Arlita - Arena	
	Dist. (cm)	Ángulo (°)	Dist. (cm)	Ángulo (°)
A1-P1	27	0	27	90
A1-P2	21	0	21	0
A1-P3	14	150	14	150
A1-P4	7	225	7	225
A1-P5	0	0	0	0
A2-P1	27	270	27	0
A2-P2	21	270	21	270
A2-P3	14	60	14	60
A2-P4	7	135	7	135
A2-P5	0	0	0	0
A3-P1	27	180	27	270
A3-P2	21	180	21	180
A3-P3	14	330	14	330
A3-P4	7	45	7	45
A3-P5	0	0	0	0
A4-P1	27	90	27	180
A4-P2	21	90	21	90
A4-P3	14	240	14	240
A4-P4	7	315	7	315
A4-P5	0	0	0	0

En la Tabla XIX, se presentan los valores de actividad obtenidos para la fuente de  $^{152}\text{Eu}$  en las cinco posiciones radiales, para las cuatro disposiciones angulares y para las tres matrices estudiadas en estático. También se presentan los valores de la actividad media correspondientes a cada posición.

Se observa como todos los valores medios de actividad obtenidos para cada una de las posiciones radiales, son estadísticamente iguales a la actividad de referencia (Tabla XIX), lo que permitió comprobar que el modelo matemático empleado reproducía correctamente la eficiencia para las matrices y posiciones de la fuente estudiadas en estático.

Se puede concluir que la actividad de un bidón heterogéneo con materiales residuales se puede determinar de una manera precisa mediante la metodología del bidón en estático, a partir de las actividades obtenidas en estático de distintas posiciones del bidón en relación al detector, siempre que se conozca la posición de la fuente en el bidón.

Tabla XIX. Actividades de los bidones con la fuente de  $^{152}\text{Eu}$  con medida en estático.

Posición	Ángulo	Act. bidón Aire (MBq)	Act. bidón Arlita (MBq)	Act. bidón Arena (MBq)
1	1	$12,2 \pm 0,4$	$11,9 \pm 0,4$	$8,1 \pm 0,4$
	2	$13,2 \pm 0,6$	$11,1 \pm 0,4$	$8,2 \pm 0,4$
	3	$12,6 \pm 0,6$	$13,6 \pm 0,6$	$9,9 \pm 0,4$
	4	$12,7 \pm 0,6$	$12,4 \pm 0,6$	$12,5 \pm 1,0$
	Media	$12,7 \pm 0,8$	$12,3 \pm 2,2$	$9,7 \pm 4,0$
2	1	$11,7 \pm 0,4$	$10,0 \pm 0,4$	$11,5 \pm 0,6$
	2	$13,2 \pm 0,6$	$10,5 \pm 0,4$	$9,1 \pm 0,4$
	3	$11,9 \pm 0,4$	$13,5 \pm 0,6$	$11,0 \pm 0,8$
	4	$13,0 \pm 0,6$	$14,5 \pm 0,6$	$9,8 \pm 0,4$
	Media	$12,5 \pm 1,4$	$12,2 \pm 4,4$	$10,4 \pm 2,2$
3	1	$11,1 \pm 0,4$	$10,5 \pm 0,4$	$7,4 \pm 0,4$
	2	$11,3 \pm 0,4$	$11,3 \pm 0,4$	$7,9 \pm 0,4$
	3	$13,3 \pm 0,6$	$13,8 \pm 0,6$	$12,4 \pm 0,6$
	4	$12,7 \pm 0,6$	$10,9 \pm 0,4$	$11,7 \pm 0,6$
	Media	$12,1 \pm 2,2$	$11,6 \pm 3,0$	$9,8 \pm 5,2$
4	1	$12,4 \pm 0,6$	$10,7 \pm 0,4$	$8,9 \pm 0,4$
	2	$12,2 \pm 0,6$	$11,8 \pm 0,4$	$7,4 \pm 0,4$
	3	$13,2 \pm 0,6$	$13,4 \pm 0,6$	$10,0 \pm 0,4$
	4	$12,2 \pm 0,6$	$10,4 \pm 0,4$	$12,7 \pm 0,6$
	Media	$12,5 \pm 1,0$	$11,6 \pm 2,6$	$9,7 \pm 4,4$
5	1	$12,0 \pm 0,6$	$11,1 \pm 0,4$	$14,9 \pm 0,6$
	2	$12,7 \pm 0,6$	$12,5 \pm 0,6$	$11,2 \pm 0,6$
	3	$12,8 \pm 0,6$	$12,0 \pm 0,4$	$8,6 \pm 0,4$
	4	$12,2 \pm 0,6$	$10,6 \pm 0,4$	$10,2 \pm 0,4$
	Media	$12,4 \pm 0,8$	$11,5 \pm 1,6$	$11,2 \pm 5,4$
Actividad patrón		$12,6 \pm 1,0$	$11,9 \pm 1,0$	$10,7 \pm 0,8$

Las incertidumbres están expresadas para un factor de cobertura  $k = 2$ .

#### 4.4.2 Determinación de la actividad en dinámico con ponderación

En este estudio se determinó la actividad de la fuente de  $^{152}\text{Eu}$  con el bidón rotando uniformemente con el objeto de minimizar el efecto de falta de homogeneidad en la matriz [38, 43, 76]. Los ensayos se realizaron para cada una de las cinco posiciones radiales definidas en el estudio efectuado en estático (P5, P4, P3, P2 y P1). En la Figura 52, se representan las trayectorias circulares originadas por la fuente en el movimiento de rotación del bidón frente al detector.

En la Figura 53 se muestra el conjunto bulto-detector, estando el bidón ubicado sobre la plataforma giratoria. La velocidad de rotación fue una velocidad uniforme comprendida entre 3 y 7 rpm.

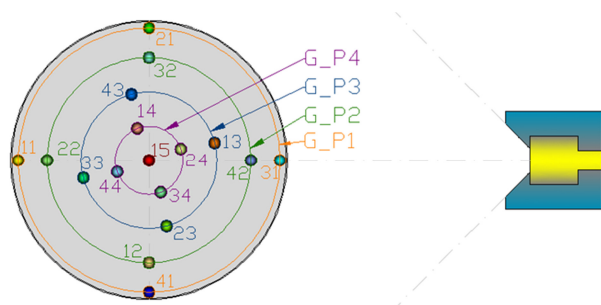


Figura 52. Trayectorias circulares originadas por la fuente en el movimiento de rotación del bidón.



Figura 53. Conjunto bulto-detector.

La determinación de la actividad del bidón rotando se realizó haciendo uso de las eficiencias obtenidas en estático para cada una de las cinco posiciones radiales estudiadas, pero teniendo en cuenta la distancia de la fuente al detector y considerando las cuatro disposiciones angulares contempladas en estático. Debido a que las posiciones de la fuente próximas al detector tienen una influencia elevada en la eficiencia comparada con las posiciones más alejadas del mismo, se definió un factor de ponderación  $F$  en función de la distancia de la fuente al detector de acuerdo con el esquema que se puede ver en la Figura 54.

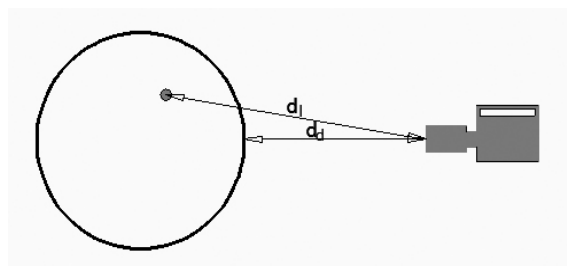


Figura 54. Esquema general para la determinación del factor de ponderación  $F$ .

El factor de ponderación para una posición  $i$  en el ángulo  $j$ ,  $F_{ij}$ , se determinó mediante la expresión 25.

$$F_{ij} = \sqrt{(d_i/d_d)} \quad <25>$$

donde,

$F_{ij}$ : es el factor de ponderación para la posición  $i$  en el ángulo  $j$ ;

$d_i$ : es la distancia lineal de la fuente al detector, en cm;

$d_d$ : es la distancia del bidón al detector, en cm.

El factor de ponderación en función de la distancia de la fuente al detector, permitió determinar una eficiencia promedio ponderada (EPP) para cada una de las posiciones radiales; así para la posición 1 la EPP1 viene dada por la expresión 26.

$$EPP1 = \frac{EP1A1 + EP1A2 + EP1A3 + EP1A4}{4} \quad <26>$$

donde,

*EP1A1*, *EP1A2*, *EP1A3* y *EP1A4* se corresponden con las eficiencias ponderadas de la posición 1 en las cuatro disposiciones angulares, en tanto por uno.

La eficiencia promedio ponderada, EPP, consistió en la media aritmética de las cuatro eficiencias ponderadas obtenidas en estático y correspondientes a las cuatro disposiciones angulares.

La actividad de la fuente se determinó aplicando la EPP y realizando la medida con rotación uniforme del bidón. Los resultados de la actividad del bidón con la fuente de  $^{152}\text{Eu}$  situada en las 5 posiciones radiales y para las diferentes matrices estudiadas, utilizando en cada caso su EPP, se presentan en la Tabla XX. Las actividades obtenidas muestran una buena concordancia con los valores de referencia, fundamentalmente para la matriz de aire y de arlita. Por tanto, los valores de actividad tendrán una exactitud adecuada si se conoce la posición de la fuente dentro del bidón. Sin embargo, los resultados obtenidos en la Tabla XX no son reproducibles en una situación real, debido al desconocimiento de la posición de la fuente en el bidón.

Tabla XX. Actividades de la fuente de  $^{152}\text{Eu}$  obtenidas con EPP de cada posición y con el bidón rotando.

Posición	Eficiencia EPP	Act. bidón aire (MBq)	Act. bidón arlita (MBq)	Act. bidón arena (MBq)
1G	Wei-Av-Eff. P1	12,7 ± 0,6	11,6 ± 0,6	8,9 ± 0,4
2G	Wei-Av-Eff. P2	12,7 ± 0,6	12,3 ± 0,6	11,4 ± 0,6
3G	Wei-Av-Eff. P3	12,7 ± 0,6	12,1 ± 0,6	11,1 ± 0,6
4G	Wei-Av-Eff. P4	12,3 ± 0,6	11,9 ± 0,6	10,9 ± 0,6
5G	Wei-Av-Eff. P5	12,4 ± 0,6	11,2 ± 0,4	9,9 ± 0,4
Actividad patrón		12,6 ± 1,0	11,9 ± 1,0	10,7 ± 0,8

Las incertidumbres están expresadas para un factor de cobertura  $k = 2$ .

En la Figura 55 se han representado las actividades determinadas para la fuente de  $^{152}\text{Eu}$  situada en las cinco posiciones radiales consideradas, siendo la matriz del bidón de aire. De forma análoga en la Figura 56 y Figura 57 se han representado para las matrices de arlita y arena. La determinación de las actividades se ha realizado con las eficiencias promedio ponderadas de las distintas posiciones radiales, y el valor de referencia se ha representado mediante una línea horizontal.

En las diferentes gráficas se observa como la determinación de la actividad para una posición radial concreta, con una eficiencia ponderada diferente a la posición que ocupa la fuente, genera unos resultados discrepantes. La discrepancia observada aumenta con la densidad aparente del bidón, como se refleja en los valores del bidón con la matriz de arena de densidad  $1,36 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ , donde se aprecia como para las posiciones más externas los valores son menos exactos que para las posiciones intermedias.



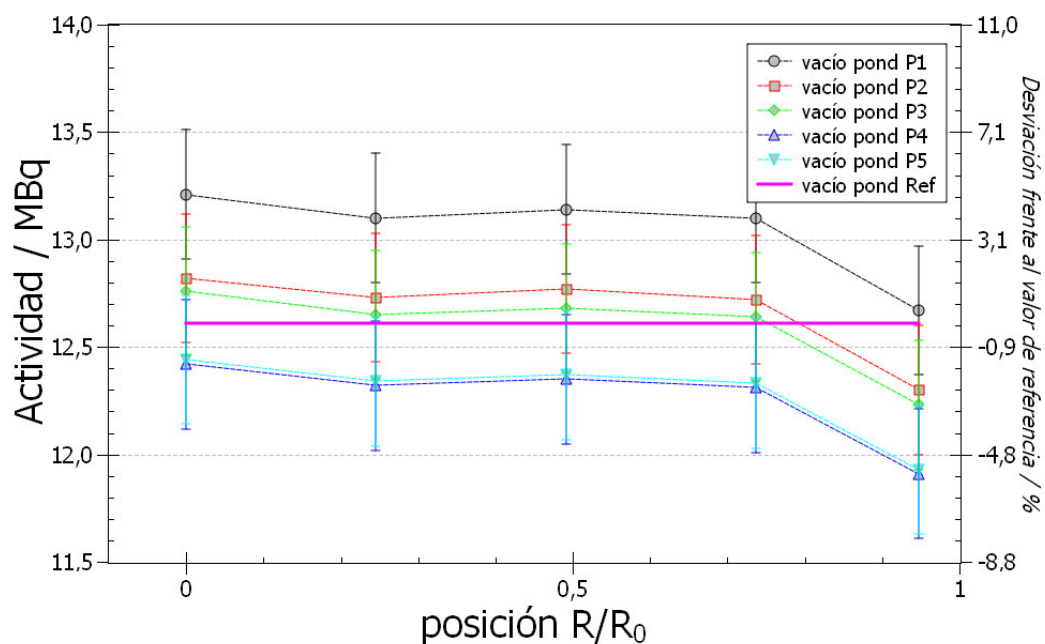


Figura 55. Actividades de la fuente de  $^{152}\text{Eu}$  para el bidón con matriz de aire, obtenidas para cada posición radial utilizando las EPP de las distintas posiciones radiales.

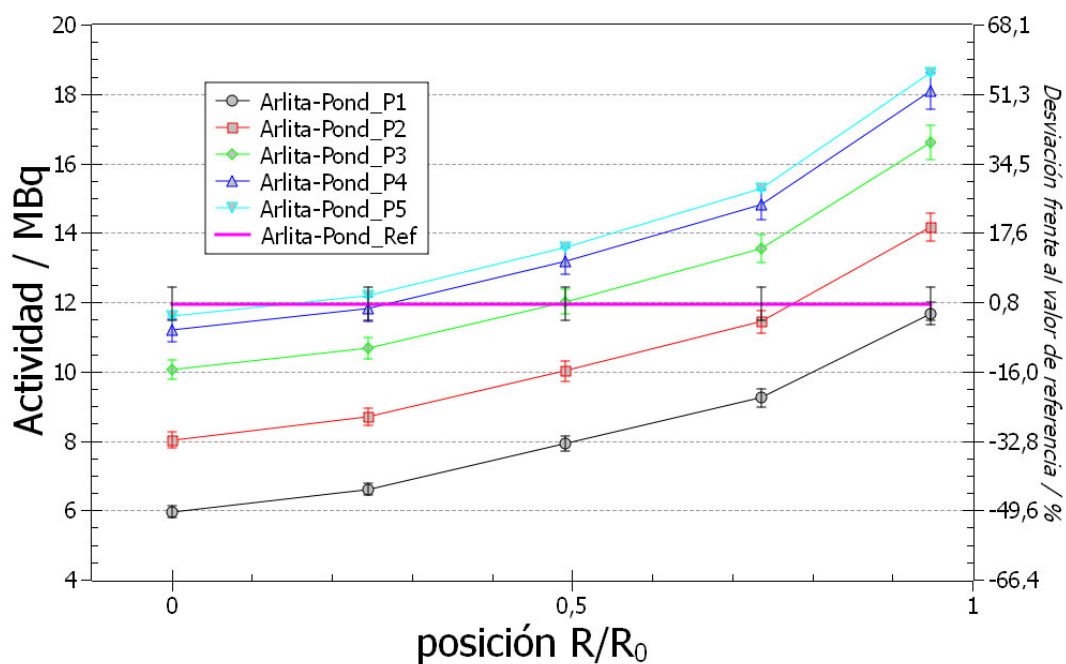


Figura 56. Actividades de la fuente de  $^{152}\text{Eu}$  para el bidón con matriz de arlita, obtenidas para cada posición radial utilizando las EPP de las distintas posiciones radiales.



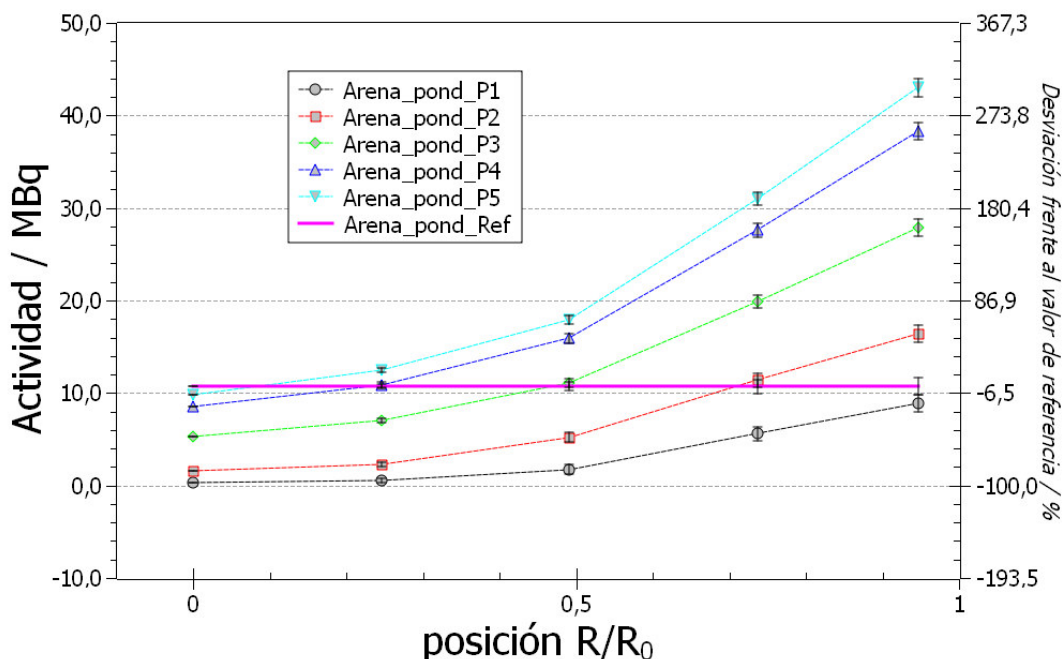


Figura 57. Actividades de la fuente de  $^{152}\text{Eu}$  para el bidón con matriz de arena, obtenidas para cada posición radial utilizando las EPP de las distintas posiciones radiales.

Este comportamiento es lógico, ya que siempre que se utilice una eficiencia de una posición interna para el cálculo de la actividad de una fuente situada en el exterior, el valor de actividad obtenido será muy superior al valor de referencia. Mientras que si se determina la actividad de una posición concreta con su eficiencia ponderada, el valor obtenido está muy próximo al valor de referencia.

La determinación de la actividad para una posición radial concreta de la fuente contenida en un bidón heterogéneo, se puede realizar haciendo uso de la eficiencia promedio ponderada (EPP) para dicha posición, realizando la medida con movimiento de rotación uniforme. Esta metodología de la EPP, reproduce satisfactoriamente la actividad del bidón heterogéneo siempre que se conozca la posición de la fuente.

Se observa que la dispersión que se produce en la determinación de la actividad cuando no se tiene conocimiento de la ubicación de la fuente en la matriz de aire, oscila en torno a un  $\pm 5 \%$  (Figura 55); para la matriz de arlita oscila alrededor del 50 % (Figura 56); mientras que las fluctuaciones en la matriz de arena pueden llegar a ser superiores al 200 % (Figura 57).

Esta dispersión observada en los resultados obtenidos en la determinación de la actividad para los casos en los que no se conocía la distribución de la actividad en el bidón, planteó la aplicación de dos metodologías distintas:

- Multieficiencia media ponderada final (MEPF), consistió en la determinación de una multieficiencia obtenida como media de todas eficiencias ponderadas correspondientes a las posiciones definidas en estático.
- Eficiencia media ponderada intermedia (EMPY), consistió en la determinación de una eficiencia que correspondía a la zona que presentaba una mayor probabilidad

de localizar la actividad, evitando los valores extremos que son los que presentaban mayor dispersión.

En la Tabla XXI, se presentan los resultados obtenidos con la MEPF que contempla todas las posiciones estudiadas en estático. Se observa como a medida que aumenta la densidad los valores de actividad obtenidos para las distintas posiciones difieren cada vez más del valor de referencia (actividad patrón).

Tabla XXI. Actividades obtenidas con la MEPF.

Posición	Act. bidón aire (MBq)	Act. bidón arlita (MBq)	Act. bidón arena (MBq)
G1	12,7 ± 0,6	15,4 ± 0,06	19,8 ± 0,8
G2	13,1 ± 0,6	12,5 ± 0,06	13,6 ± 0,6
G3	13,1 ± 0,6	11,0 ± 0,04	5,7 ± 0,2
G4	13,1 ± 0,6	9,6 ± 0,04	2,25 ± 0,14
G5	13,2 ± 0,6	9,0 ± 0,04	1,53 ± 0,10
Act. patrón	12,6 ± 1,0	12,0 ± 1,0	10,7 ± 0,8

Las incertidumbres están expresadas para un factor de cobertura  $k = 2$ .

Para la determinación de la EMPY, se establecieron tres áreas: una interior, cilíndrica, con un radio de 10 cm; una corona cilíndrica intermedia con radios de 10 y 20 cm; y una corona cilíndrica exterior con radios de 20 y 28,5 cm respectivamente. A continuación se determinaron las eficiencias medias ponderadas de cada área y en base a los resultados obtenidos se eligió la zona intermedia evitándose los valores extremos que eran los que mayor dispersión presentaban. Finalmente, se estableció el radio medio para la determinación de la eficiencia en  $Y = 17$  cm, que se correspondía con el valor medio entre la posición P3 (a 14 cm del centro) y 20 cm que era el radio exterior de la corona considerada. En la Tabla XXII se presentan los resultados obtenidos con la EMPY.

Tabla XXII. Actividades obtenidas con la EMPY para  $Y=17$  cm.

Posición	Act. bidón aire (MBq)	Act. bidón arlita (MBq)	Act. bidón arena (MBq)
G1	13,0 ± 0,6	16,4 ± 0,6	22,6 ± 1,0
G2	13,5 ± 0,6	13,2 ± 0,4	16,0 ± 0,8
G3	13,5 ± 0,6	11,6 ± 0,4	8,4 ± 0,4
G4	13,5 ± 0,6	10,2 ± 0,4	4,6 ± 0,2
G5	13,6 ± 0,6	9,5 ± 0,4	3,3 ± 0,2
Act. patrón	12,6 ± 1,0	12,0 ± 1,0	10,7 ± 0,8

Las incertidumbres están expresadas para un factor de cobertura  $k = 2$ .

Los resultados obtenidos con las metodologías estudiadas MEPF y EMPY son concordantes. Sin embargo se observa un elevado grado de imprecisión que presentan las determinaciones en el caso de la matriz de arena indistintamente de la metodología utilizada.

Las metodologías estudiadas, MEPF y EMPY, son válidas para densidades bajas y moderadas, observándose que a medida que aumenta la densidad la precisión en la

determinación de la actividad decrece, como se aprecia en el caso de la matriz de arena. Para densidades moderadas y altas, la atenuación de la radiación se produce indistintamente por el efecto fotoeléctrico, efecto Compton y formación de pares, y deben de tenerse en cuenta como se vio en el apartado 4.3.4 [59, 60, 117, 118, 123].

Los resultados obtenidos aplicando la metodología del bidón con movimiento de rotación uniforme, muestran una buena concordancia con los valores de referencia, fundamentalmente para las matrices de menor densidad. Además, la realización de las medidas con rotación supone una optimización en los tiempos de medida, al disminuir éstos en un 75 % o más.

#### 4.4.3 Comparación de eficiencia matemática y experimental

En este apartado se presenta la comparación de la eficiencia matemática de la técnica de espectrometría  $\gamma$  con ISOCS para bidones heterogéneos (eficiencia ponderada) comparada con la eficiencia experimental (certificado). Dicha comparación se realizó para las tres matrices estudiadas (aire, arlita y arena), fijando la distancia bulto-detector en 50 cm.

Con el fin de comparar las eficiencias ponderadas (MEPF y EMPY) de las distintas posiciones obtenidas con ISOCS con la eficiencia experimental (certificado), se ha representado para una posición radial concreta la eficiencia en función de la energía para las tres matrices estudiadas (Figura 58 a Figura 60). Las eficiencias ISOCS aplicadas fueron las definidas en el apartado 4.4.2, es decir la multieficiencia media ponderada final (MEPF) y la eficiencia media ponderada intermedia respectivamente (EMPY). Los tiempos de medida fueron de 900 s.

En la matriz de aire (Figura 58), se aprecia como las eficiencias obtenidas con ISOCS con cualquiera de las dos metodologías desarrolladas (MEPF y EMPY), son inferiores a la eficiencia experimental (certificado), lo que concuerda con los resultados obtenidos en las Tabla XXI (MEPF) y Tabla XXII (EMPY). En el caso de la matriz de arlita (Figura 59), las eficiencias obtenidas por las dos metodologías desarrolladas están solapadas con la de referencia. Finalmente, para la matriz de arena (Figura 60), se aprecia unos valores inferiores a la eficiencia experimental, debido al efecto de la densidad de la matriz sobre la atenuación de la radiación, observándose además que la eficiencia obtenida con la metodología de la posición intermedia (EMPY), es más concordante con la del certificado que la eficiencia obtenida con la multieficiencia media ponderada final (MEPF), confirmándose esta situación con el resultado obtenido en la Tabla XXII (EMPY) frente al valor obtenido en la Tabla XXI (MEPF).

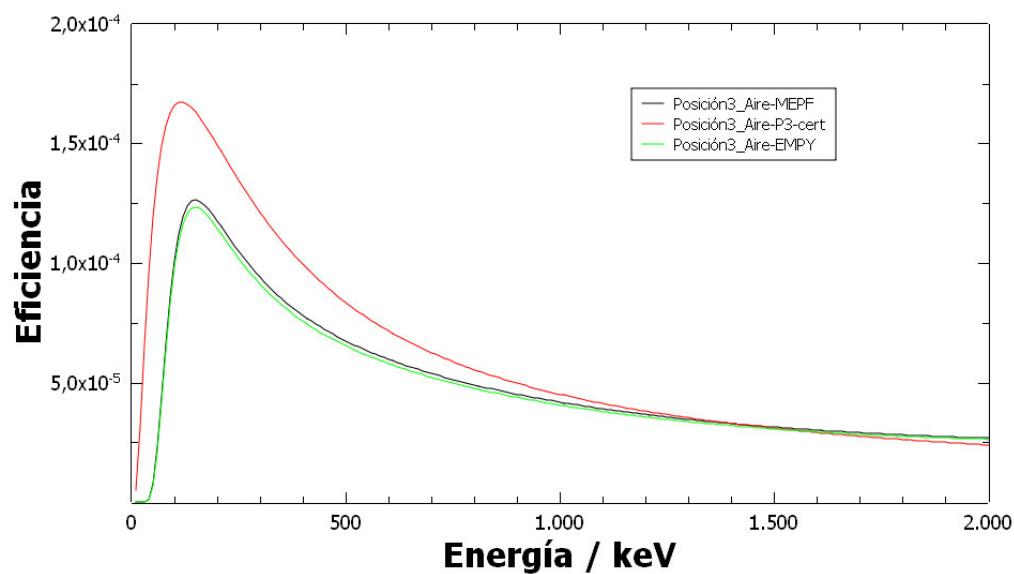


Figura 58. Comparación entre la eficiencia obtenida con certificado y las determinadas con ISOCS mediante las dos metodologías definidas (MEPF y EMPY), para el bidón rotando con matriz de aire y la fuente ubicada en la posición 3.

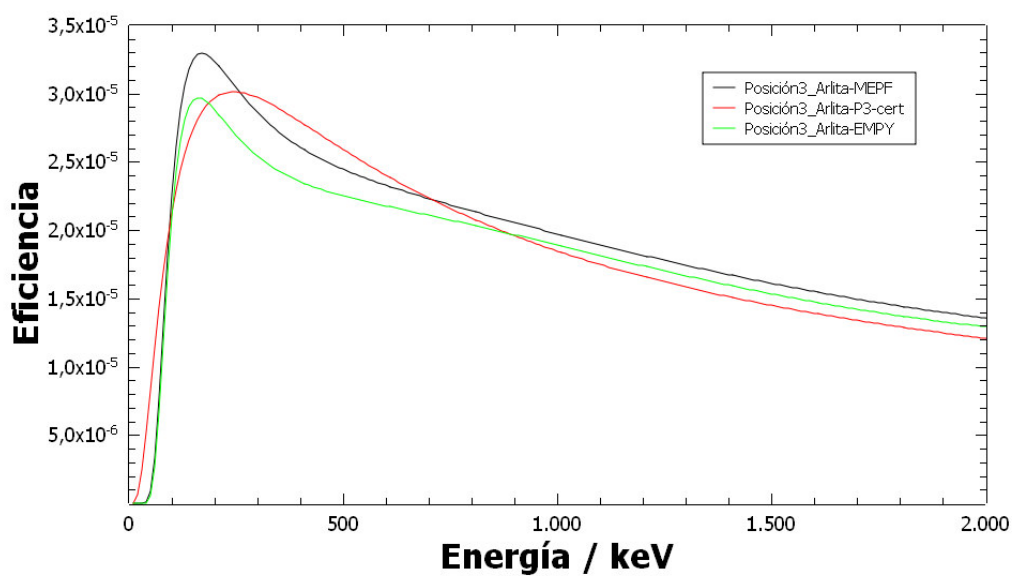


Figura 59. Comparación entre la eficiencia obtenida con certificado y las determinadas con ISOCS mediante las dos metodologías definidas (MEPF y EMPY), para el bidón rotando con matriz de arlita y la fuente ubicada en la posición 3.

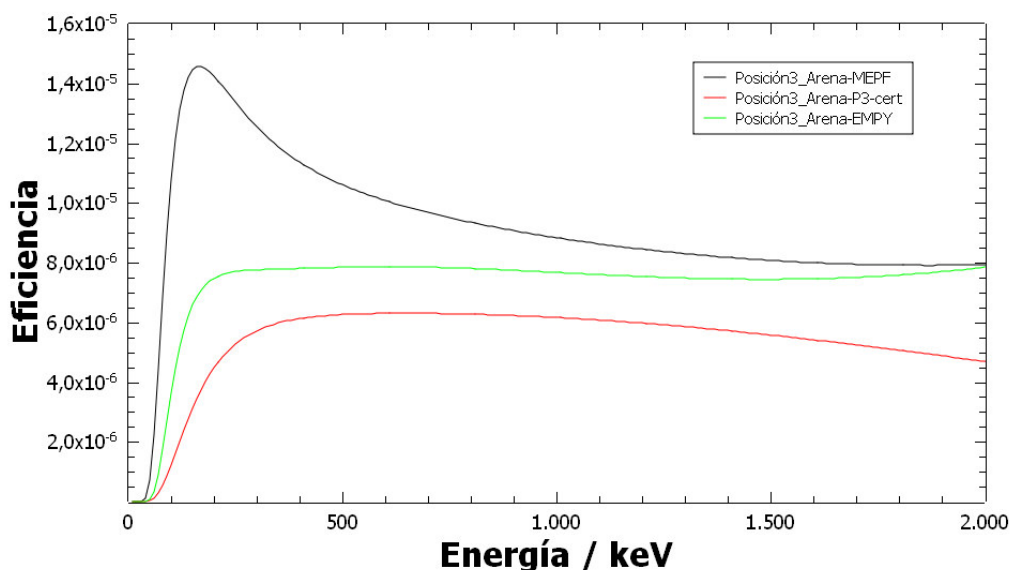


Figura 60. Comparación entre la eficiencia obtenida con certificado y las determinadas con ISOCS mediante las dos metodologías definidas (MEPF y EMPY), para el bidón rotando con matriz de arena y la fuente ubicada en la posición 3.

#### 4.4.4 Conclusiones parciales

- La actividad de un bulto heterogéneo con materiales residuales se puede determinar de una manera precisa mediante la metodología del bulto en estático, es decir, a partir de las actividades obtenidas en estático de distintas posiciones del bulto en relación al detector.
- Los resultados obtenidos aplicando la metodología del bulto con movimiento de rotación uniforme, muestran una buena concordancia con los valores de referencia, fundamentalmente para las matrices de menor densidad. Además, la realización de las medidas con rotación suponen una optimización en los tiempos de medida, al disminuir éstos en un 75 % o más.
- La determinación de la actividad para una posición radial concreta de la fuente contenida en un bidón heterogéneo, se puede realizar haciendo uso de la eficiencia promedio ponderada (EPP) para dicha posición, realizando la medida con movimiento de rotación uniforme. Esta metodología de la EPP, reproduce satisfactoriamente la actividad del bidón heterogéneo siempre que se conozca la posición de la fuente.

## 4.5 Metodología para la caracterización de bultos

La caracterización de bultos con residuos radiactivos mediante espectrometría  $\gamma$  con técnicas no destructivas, considera habitualmente la aproximación de que tanto la matriz como la actividad están uniformemente distribuidas en el bulto, como ya se ha comentado en el apartado 4.4 [76, 102]. Sin embargo, esta condición no se suele cumplir en bultos con residuos heterogéneos, como es el caso de los bultos con materiales residuales generados en los trabajos de rehabilitación dentro del Proyecto PIMIC-R, que entrarían dentro del grupo de bultos heterogéneos, tanto en lo que respecta a la matriz como a la distribución de la actividad en los mismos. Por lo que se cometen errores en el ensayo debidos al desconocimiento de la distribución de la actividad en el bulto así como a la falta de homogeneidad de la matriz.

La determinación de la actividad para bultos heterogéneos de acuerdo con los resultados obtenidos en el apartado 4.4, requiere del cálculo de la curva de eficiencia que permita determinar la actividad del bulto con una exactitud aceptable.

Por otra parte, los factores más influyentes en la determinación de la actividad en bidones homogéneos de acuerdo con los resultados obtenidos en el apartado 4.3, son los siguientes (Figura 61):

- La composición de la matriz, fundamentalmente la presencia de Fe y Ca en la matriz.
- La densidad de la matriz en todos los intervalos de energía.
- La distancia bulto–detector.

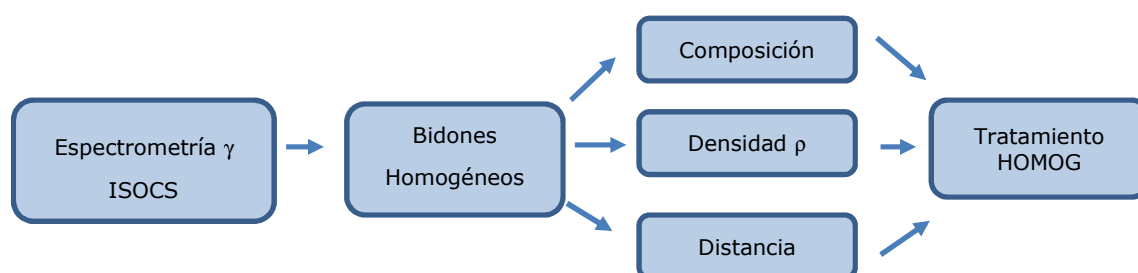


Figura 61. Factores influyentes en la determinación de actividad por espectrometría  $\gamma$  *in situ* con ISOCS aplicada a bidones homogéneos.

Factores como la composición, densidad y distancia junto con la distribución no homogénea de la actividad son igualmente influyentes en la determinación de la actividad en bidones heterogéneos.

En este apartado, se ha realizado una comparación de los resultados obtenidos en la caracterización de bultos heterogéneos haciendo uso de las distintas técnicas estudiadas en la caracterización de bultos homogéneos y bultos heterogéneos, con el objeto de establecer

una metodología idónea para la caracterización de bultos con materiales residuales teniendo en cuenta su densidad.

En la Tabla XXIII se recogen el conjunto de posibilidades que se pueden presentar en la generación de bultos con materiales residuales en base a las combinaciones de matriz y actividad, para densidades  $< 1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  y para densidades  $> 1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ .

Tabla XXIII. Combinación de posibilidades en la generación de bultos de materiales residuales.

Matriz	Actividad	Densidad
Homogénea	Homogénea	todas
Homogénea	Heterogénea	$\rho < 1$ $\rho > 1$
Heterogénea	Heterogénea	$\rho < 1$ $\rho > 1$

Para la realización de este estudio se utilizaron un total de 7 bidones con materiales residuales. Por una parte se acondicionaron dos bidones con muestras pertenecientes al Proyecto PIMIC y fuentes calibradas:

- Para densidades inferiores a  $1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  se acondicionó un bidón de  $0,22 \text{ m}^3$  de acero inoxidable con muestras de materiales residuales desclasificables (CIP-1321). El bidón con una densidad igual a  $0,88 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ , fue caracterizado mediante espectrometría  $\gamma$  *in situ* con ISOCS haciendo uso de la metodología heterogénea con las dos eficiencias estudiadas (MEPF y EMPY) y de la metodología homogénea (HOMOG).
- Para densidades superiores a  $1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  se acondicionó un bidón con matriz de yeso y con una densidad igual a  $1,2 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  que contenía 3 viales calibrados y se procedió a su caracterización mediante espectrometría  $\gamma$  *in situ* con ISOCS aplicando las metodologías heterogéneas así como mediante la metodología homogénea (HOMOG).

Por otra parte, se hizo uso de cinco bidones preparados y cerrados con materiales residuales correspondientes al desmantelamiento de una instalación del CIEMAT. Los bidones fueron clasificados de acuerdo con su densidad aparente:

- Los que presentaban densidades bajas (menores de  $1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ).
- Los que presentaban densidades altas (superiores a  $1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ).

En la Tabla XXIV se recogen las densidades de los bidones que se utilizaron en la realización de este estudio.

Con el objeto de minimizar los errores que se cometen debidos a la falta de homogeneidad tanto en la distribución de la actividad como de la propia matriz, la realización del ensayo se ha efectuado en dinámico, lo que supone además un ahorro de tiempo frente a la realización del ensayo en estático.

Los estudios se han realizado por tanto bajo las siguientes condiciones:

1. Ensayo en dinámico, es decir con movimiento de rotación uniforme del bidón.
2. Detector situado a mitad de altura del bidón.
3. Densidad aparente del bidón conocida.
4. Uso del código matemático ISOCS

Tabla XXIV. Densidades de los bidones utilizados en los ensayos.

<b>Bidón</b>	<b>Densidad aparente / <math>\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}</math></b>
CIP-1321	0,89
CIP-YESO	1,20
CIP-3097	1,17
CIP-1103	1,10
CIP-1159	1,11
CIP-3465	1,23
CIP-1060	1,14

#### 4.5.1 Caracterización de bidones

Una vez establecidas las condiciones para la realización de los ensayos de los diferentes estudios realizados:

- 1) Tratamiento homogéneo para distintas densidades.
- 2) Tratamiento heterogéneo para distintas densidades.

El propósito de este estudio es la comparación de ambos tratamientos con el objetivo de establecer la metodología idónea para la caracterización de bultos con materiales residuales con el fin de proceder a su desclasificación en caso de que los niveles de actividad sean inferiores a los niveles de desclasificación (ND).

##### 4.5.1.1 Densidades $< 1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$

La caracterización del bidón de acero inoxidable, CIP-1321 de  $0,22 \text{ m}^3$  acondicionado con materiales desclasificables procedentes del Proyecto PIMIC-R, y con una densidad aparente igual a  $0,88 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ , fue realizada mediante espectrometría  $\gamma$  *in situ* con ISOCS aplicando la metodología heterogénea con las dos eficiencias estudiadas (MEPF y EMPY) y mediante la metodología homogénea (HOMOG). Los resultados de se recogen en la Tabla XXV.

En este caso se observa como los resultados obtenidos con las distintas metodologías de caracterización aplicadas mediante espectrometría  $\gamma$  *in situ* con ISOCS, son estadísticamente comparables y solapan entre ellos para un factor de cobertura de  $k = 2$ . Siendo los resultados obtenidos mediante la metodología HOMOG los que presentan mayor exactitud en relación con los valores de referencia obtenidos en laboratorio.



Tabla XXV. Determinación de la actividad del bidón CIP-1321 con materiales desclasificables, mediante distintas metodologías de caracterización con ISOCS ( $\rho = 0,88 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ).

CIP-1321	ISOCS (MEPF)	ISOCS (EMPY)	ISOCS (HOMOG)	REF. (LAB)
	Act. (kBq)	Act. (kBq)	Act. (kBq)	Act. (kBq)
$^{40}\text{K}$	$104 \pm 12$	$104 \pm 12$	$94,61 \pm 10,82$	$85,31 \pm 9,13$
$^{133}\text{Ba}$	$4,79 \pm 1,04$	$5,75 \pm 1,28$	$4,02 \pm 0,86$	$3,80 \pm 0,91$
$^{137}\text{Cs}$	$15,92 \pm 2,02$	$17,21 \pm 2,22$	$13,20 \pm 1,66$	$12,21 \pm 2,12$
$^{152}\text{Eu}$	$6,81 \pm 1,41$	$7,11 \pm 1,40$	$5,87 \pm 1,12$	$5,12 \pm 1,10$

Las incertidumbres están expresadas para un factor de cobertura  $k = 2$ .

Por tanto, en base a los resultados obtenidos en el estudio realizado se puede concluir que bidones con materiales residuales heterogéneos y densidades  $< 1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  se pueden asimilar a bidones homogéneos. Por lo que se adoptará la metodología homogénea (HOMOG) con movimiento de rotación del bidón para la caracterización de bidones heterogéneos con densidades  $< 1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ .

Esta asimilación de los bidones heterogéneos con densidades bajas a bidones homogéneos, supone la adopción de una metodología más sencilla de aplicar frente a la metodología heterogénea que requiere la determinación de la curva de eficiencia de una forma más compleja.

#### 4.5.1.2 Densidades $> 1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$

La caracterización de cinco bidones preparados con materiales residuales desclasificables procedentes del Proyecto PIMIC-R y densidades aparentes superiores a  $1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ , fue realizada mediante espectrometría  $\gamma$  *in situ* con ISOCS. Los resultados obtenidos para la actividad del  $^{137}\text{Cs}$  con las tres metodologías estudiadas (MEPF, EMPY y HOMOG), se presentan en la Tabla XXVI y son estadísticamente comparables, solapando todos ellos entre sí para un factor de cobertura  $k = 2$ .

Sin embargo, los resultados obtenidos no permiten la elección de una metodología concreta, se aprecia una buena precisión en los resultados obtenidos para la actividad del  $^{137}\text{Cs}$ , siendo superiores los valores de actividad determinados mediante la metodología heterogénea frente a la homogénea.

Tabla XXVI. Actividad de  $^{137}\text{Cs}$  contenida en los bidones con materiales desclasificables y determinada con las eficiencias: MEPF, EMPY y HOMOG.

BIDÓN	Densidad ( $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$ )	$^{137}\text{Cs}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{137}\text{Cs}$
		ISOCS (MEPF)	ISOCS (EMPY)	ISOCS (HOMOG)
		Act. (kBq)	Act. (kBq)	Act. (kBq)
CIP-3097	1,17	$1,64 \pm 0,52$	$2,12 \pm 0,68$	$1,42 \pm 0,96$
CIP-1103	1,10	$1,54 \pm 0,44$	$1,94 \pm 0,54$	$1,35 \pm 0,74$
CIP-1159	1,11	$0,35 \pm 0,36$	$0,44 \pm 0,44$	$0,51 \pm 0,62$
CIP-3465	1,23	$< 1,56$	$< 2,02$	$< 1,36$
CIP-1060	1,14	$1,59 \pm 0,46$	$1,98 \pm 0,56$	$1,38 \pm 0,78$

Las incertidumbres están expresadas para un factor de cobertura  $k = 2$ .

Por este motivo, se procedió a la caracterización de un bidón de acero inoxidable de  $0,22 \text{ m}^3$ , conteniendo 3 viales calibrados de  $^{152}\text{Eu}$  con una actividad total de  $17,2 \pm 1,52 \text{ MBq}$  con fecha de referencia 18-05-2012, ubicados aleatoriamente en el mismo. Los resultados obtenidos en la caracterización de dicho bidón ( $\rho = 1,2 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  y matriz de yeso) mediante espectrometría  $\gamma$  *in situ* con ISOCS aplicando la metodología heterogénea con las dos eficiencias definidas MEPF y EMPY, así como la metodología homogénea (HOMOG) se recogen en la Tabla XXVII.

Tabla XXVII. Actividad de  $^{152}\text{Eu}$  contenida en el bidón YESO ( $\rho = 1,2 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) y determinada con las eficiencias de la metodología heterogénea, homogénea y la correspondiente a certificado.

BIDÓN YESO	ISOCS (MEPF)	ISOCS (EMPY)	ISOCS (HOMOG)	CERTIFICADO
	Act. (MBq)	Act. (MBq)	Act. (MBq)	Act. (MBq)
Posición viales 1	$15,40 \pm 1,74$	$18,10 \pm 1,80$	$13,60 \pm 1,60$	$17,20 \pm 1,52$
Posición viales 2	$13,90 \pm 1,40$	$20,20 \pm 2,50$	$13,20 \pm 1,45$	$17,20 \pm 1,52$
Posición viales 3	$14,00 \pm 1,63$	$19,50 \pm 2,02$	$12,90 \pm 1,28$	$17,20 \pm 1,52$
Posición viales 4	$13,60 \pm 1,55$	$20,30 \pm 2,42$	$12,50 \pm 1,24$	$17,20 \pm 1,52$
Posición viales 5	$12,92 \pm 1,34$	$18,49 \pm 1,98$	$11,02 \pm 1,22$	$17,20 \pm 1,52$

Las incertidumbres están expresadas para un factor de cobertura  $k = 2$ .

Como se puede apreciar en la Tabla XXVII, los resultados obtenidos son estadísticamente comparables con la actividad de referencia (certificado) y solapan para un factor de cobertura de  $k = 2$ , presentando buena precisión y exactitud. Los resultados obtenidos mediante la metodología heterogénea son los que presentan mayor exactitud, en concreto los obtenidos mediante la eficiencia EMPY, en relación con el valor de referencia (certificado). Es por ello que la metodología homogénea (HOMOG) queda descartada para la caracterización de bidones heterogéneos con densidades  $> 1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ . Por otra parte, también hay que tener presente el factor densidad, ya que a medida que aumenta la densidad la determinación de la actividad presenta grandes imprecisiones debido a los procesos de atenuación que tienen lugar como se vio en el apartado 4.4.2.

Por tanto para bidones heterogéneos con densidades aparentes  $> 1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  se adoptará la metodología heterogénea, concretamente con la eficiencia EMPY por ser la que más se aproxima a la actividad real.

En la Figura 62 se presenta un resumen con las metodologías a aplicar en la caracterización mediante espectrometría  $\gamma$  con ISOCS de bidones heterogéneos con materiales residuales, en base al conocimiento que se tenga o no de la distribución de la actividad en los mismos y a la densidad que presentan. De tal forma que para aquellos bidones heterogéneos en los que se conozca la distribución de la actividad se aplicará la eficiencia promedio ponderada (EPP), y cuando no se conozca la distribución de la actividad, la selección de la eficiencia se realizará en función de la densidad; de forma que para densidades superiores a  $1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  se aplicara la eficiencia media ponderada intermedia (EMPY), y para densidades inferiores a  $1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  se aplicará la eficiencia correspondiente a la metodología homogénea (HOMOG).

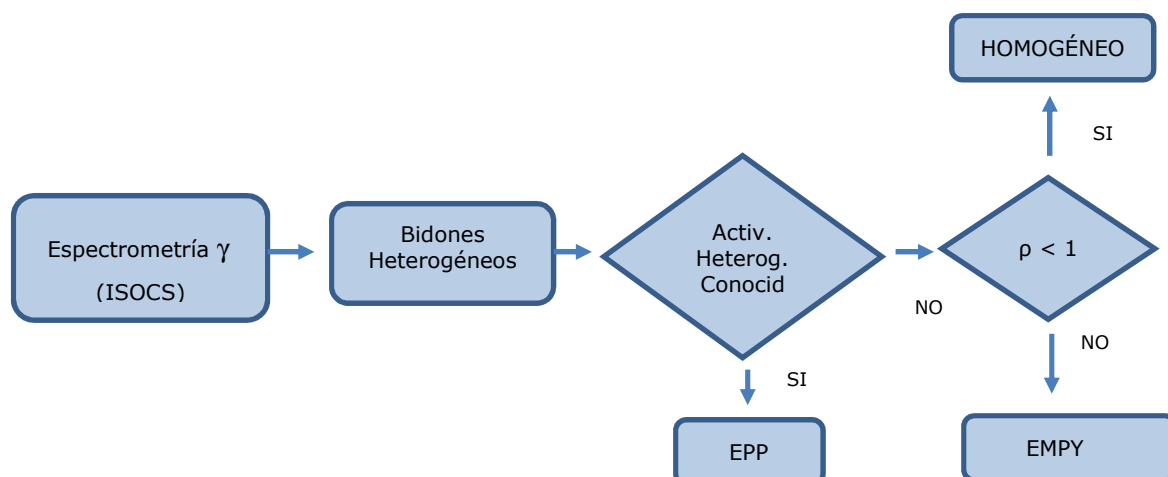


Figura 62. Metodologías idóneas para la caracterización mediante espectrometría  $\gamma$  *in situ* con ISOCS aplicada a bidones heterogéneos.

En la Tabla XXVIII se resumen todas las posibilidades que se pueden originar en la generación de bultos con materiales residuales en base a las combinaciones de matriz y actividad, para densidades  $< 1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  y para densidades  $> 1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ , así como la metodología más idónea a aplicar para su caracterización.

Tabla XXVIII. Combinación de posibilidades en la generación de bultos de materiales residuales con la metodología a aplicar.

Matriz	Actividad	Densidad	Metodología
Homogénea	Homogénea	Todas	HOMOG
Homogénea	Heterogénea	$\rho < 1$ $\rho > 1$	HOMOG EMPY
Heterogénea	Heterogénea	$\rho < 1$ $\rho > 1$	HOMOG EMPY

## 4.5.2 Validación bultos homogéneos

### 4.5.2.1 Interna

La validación interna de la actividad de los bultos homogéneos se realizó mediante la medida de un bidón de acero inoxidable de  $0,22 \text{ m}^3$ , con densidad aparente  $\rho = 1,91 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  y una actividad de  $^{152}\text{Eu}$  de  $51,6 \pm 2,6 \text{ MBq}$  con fecha de referencia 01-02-1989, homogéneamente distribuida e inmovilizada en cemento. La actividad del bidón se determinó ubicando el bidón sobre la plataforma giratoria con movimiento de rotación uniforme (7 rpm). Como se observa en la Tabla XXIX, la actividad obtenida con ISOCS-HOMOG es estadísticamente igual a la actividad de referencia, ya que está solapada para un factor de cobertura  $k = 2$ .

Los valores de actividad obtenidos en la validación interna (Tabla XXIX) fueron satisfactorios tanto para el ensayo realizado en dinámico (ISOCS-HOMOG), como para los realizados en estático con el objeto de verificar la homogeneidad del bidón para cuatro ángulos diferentes girados entre sí  $90^\circ$  (IRB-1, IRB-2, IRB-3 e IRB-4). Se demuestra por

tanto que el bulto homogéneo se puede caracterizar con varias medidas en estático a diferentes ángulos o con una medida en dinámico.

Tabla XXIX. Actividad del bidón homogéneo ( $\rho = 1,91 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) determinada mediante rotación uniforme con ISOCS-HOMOG y en estático para cuatro posiciones distintas giradas  $90^\circ$ .

<b>Bidón homogéneo.</b>	<b>Actividad (MBq)</b>
ISOCS-HOMOG	$15,0 \pm 2,2$
IRB-1	$14,3 \pm 2,1$
IRB-2	$15,1 \pm 2,1$
IRB-3	$15,2 \pm 2,2$
IRB-4	$14,6 \pm 2,2$
REFERENCIA	$16,6 \pm 1,7$

Las incertidumbres están expresadas para un factor de cobertura  $k = 2$ .

#### 4.5.2.2 Externa

La validación externa de la técnica de medida de bultos homogéneos se realizó mediante la caracterización del bidón de acero inoxidable procedente de la CN de José Cabrera, de  $0,22 \text{ m}^3$ , con residuos de baja y media actividad (RBMA) y con densidad aparente  $\rho = 1,54 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ .

La determinación de la actividad del bidón RBMA, se realizó en dinámico mediante la metodología propuesta en este trabajo de investigación. Los resultados obtenidos se presentan y comparan con los resultados remitidos por la CN conseguidos con distintas metodologías (Tabla XXX) y se han representado en la Figura 63. Es conveniente mencionar que la CN José Cabrera realizó la caracterización del bulto RBMA mediante dos técnicas diferentes:

- Detector de Ge con el software ISOCS.
- Mediante la tasa de dosis en contacto.

Los resultados obtenidos con las diferentes técnicas son estadísticamente comparables y solapan para un factor de cobertura de  $k = 2$  (Figura 63).

Los resultados que presenta la CN obtenidos mediante la tasa de dosis en contacto (TDC) son unos resultados calculados mediante una determinación indirecta, con un método teórico que correlaciona la actividad con la tasa de dosis en contacto y pueden ocasionar errores significativos. Esta metodología se suele emplear en la determinación de la actividad de radionucleidos de fácil medida, emisores y fácilmente detectables directa o indirectamente desde el exterior de un bulto de residuos, y aunque es una metodología válida para la caracterización de RBMA, sin embargo no es adecuada para la caracterización de materiales desclasificables.

Por tanto, la metodología de caracterización que se propone para bultos homogéneos será la denominada HOMOG realizando el ensayo en condiciones dinámicas (bidón rotando con velocidad uniforme comprendida entre 3 y 7 rpm). Como se puede apreciar en la Figura 63, los resultados obtenidos con la metodología homogénea para las diferentes distancias estudiadas (2, 3 y 4 m) presentan muy buena precisión así como exactitud.

Tabla XXX. Diferentes técnicas de caracterización del bulto RBMA homogéneo ( $\rho = 1,54 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ).

Técnica	$^{60}\text{Co}$ (MBq)	$^{137}\text{Cs}$ (MBq)
CIEMAT-3,0 m ISOCS-HOMOG	$4,74\text{E}+02 \pm 2,74\text{E}+01$	$4,92\text{E}+02 \pm 6,06\text{E}+01$
C.N.J.C. ISOCS	$4,56\text{E}+02 \pm 4,56\text{E}+01$	$4,43\text{E}+02 \pm 4,43\text{E}+01$
C.N.J.C. TDC	$5,33\text{E}+02 \pm 5,33\text{E}+01$	$4,09\text{E}+02 \pm 4,09\text{E}+01$

Las incertidumbres están expresadas para un factor de cobertura  $k = 2$ .

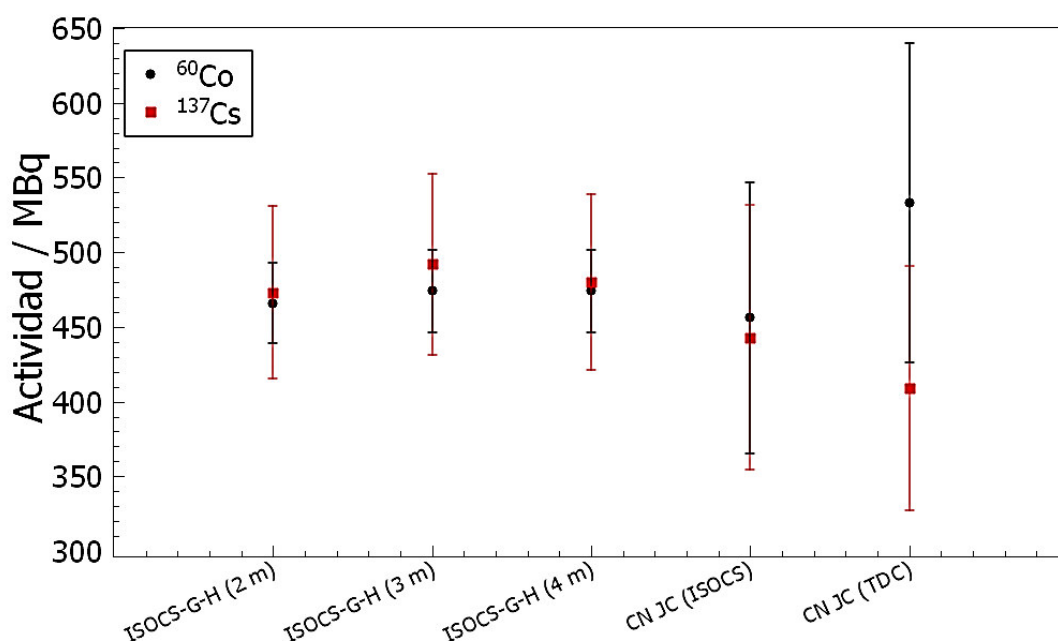


Figura 63. Comparación de los resultados obtenidos para el  $^{60}\text{Co}$  y  $^{137}\text{Cs}$  del bidón RBMA con las diferentes metodologías.

Utilizando la metodología aquí expuesta se ha podido medir y caracterizar el bulto de RBMA de la CN de José Cabrera, obteniéndose una actividad de  $474 \pm 27 \text{ MBq}$  para  $^{60}\text{Co}$  y de  $492 \pm 61 \text{ MBq}$  para  $^{137}\text{Cs}$ , aplicando como distancia óptima de adquisición de medida 3 m.

Los resultados obtenidos en la caracterización del bulto homogéneo DJ01720 de RBMA con la metodología propuesta este trabajo de investigación, además de ser estadísticamente comparables a los obtenidos con las técnicas que utiliza la CN (ENRESA) presentan una mayor precisión.

Por tanto, la técnica de espectrometría  $\gamma$  *in situ* con calibración en eficiencias mediante ISOCS, aplicada a la medida del bidón homogéneo con movimiento de rotación uniforme, es una técnica adecuada para la caracterización de materiales desclasificables por su sensibilidad, ya que cumple con el requisito que la AMD sea menor que el 50 % de los niveles de desclasificación de los radionucleidos más restrictivos, así como por la optimización en los tiempos de medida y la versatilidad en cuanto al lugar de utilización.

### 4.5.3 Validación de bultos heterogéneos

#### 4.5.3.1 Interna

La validación interna de la actividad de los bultos heterogéneos se realizó mediante la medida del bidón de acero inoxidable de  $0,22 \text{ m}^3$ , con densidad aparente  $\rho = 1,20 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  y una actividad de  $^{152}\text{Eu}$  de  $17,2 \pm 1,5 \text{ MBq}$  con fecha de referencia 18-05-2012, distribuida en tres viales aleatoriamente dispuestos en el bidón con matriz de yeso. La actividad del bidón se determinó ubicando el bidón sobre la plataforma giratoria con movimiento de rotación uniforme (7 rpm). Como se observa en la Tabla XXVII, la actividad obtenida con la metodología heterogénea haciendo uso de la eficiencia EMPY, es estadísticamente igual a la actividad de referencia (certificado), al estar solapada para un factor de cobertura  $k = 2$ .

#### 4.5.3.2 Externa

Para la realización de la validación externa de bultos heterogéneos se caracterizó un bidón heterogéneo con residuos tecnológicos procedente de una instalación radiactiva (IR) del CIEMAT. Las condiciones de medida y los parámetros del bulto fueron las siguientes:

- Colimador de  $90^\circ$  y blindaje de Pb de 50 mm.
- Distancia bidón-detector: 50 cm.
- Medidas en estático y dinámico. Ángulos de medida en estático:  $0^\circ$ ,  $60^\circ$ ,  $90^\circ$ ,  $120^\circ$ ,  $180^\circ$ ,  $240^\circ$ ,  $270^\circ$  y  $300^\circ$  respectivamente. Velocidad de rotación para la realización del ensayo en dinámico de 7 r.p.m.
- Tiempos de adquisición de medida: 600 s. Los tiempos muertos fueron inferiores al 1 % en todos los casos.
- Densidad aparente del bidón:  $0,2636 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ .
- Matriz: residuos tecnológicos.

El bulto heterogéneo presentaba una densidad de  $0,2636 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ , por tanto la caracterización se realizó mediante espectrometría  $\gamma$  *in situ* con ISOCS haciendo uso de la metodología homogénea (HOMOG) con rotación uniforme del bidón. También se realizaron ensayos de caracterización en estático con diferentes ángulos mediante la metodología homogénea con el objeto de evidenciar la heterogeneidad del bidón.

En la Tabla XXXI se recogen los resultados obtenidos en la caracterización del bidón heterogéneo mediante la realización de medidas en estático para distintos ángulos. En la última fila se recoge la media de todas las medidas realizadas en estático.

Tabla XXXI. Caracterización de bidón heterogéneo mediante metodología homogénea en estático para ángulos de 0 °, 60 °, 90 °, 120 °, 180 °, 240 °, 270 ° y 300 °.

Técnica HOMOG	$^{60}\text{Co}$ (kBq)	$^{137}\text{Cs}$ (MBq)	$^{152}\text{Eu}$ (kBq)
ISOCS-Est.-0 °	47,6 ± 3,8	1,89 ± 0,22	73,2 ± 8,6
ISOCS-Est.-60 °	26,6 ± 2,6	2,91 ± 0,34	36,5 ± 6,6
ISOCS-Est.-90 °	20,8 ± 2,2	2,65 ± 0,32	
ISOCS-Est.-120 °	20,9 ± 2,2	1,96 ± 0,24	23,8 ± 5,2
ISOCS-Est.-180 °	25,2 ± 2,4	0,91 ± 0,12	30,0 ± 5,2
ISOCS-Est.-240 °	34,4 ± 3,0	0,63 ± 0,08	47,1 ± 6,8
ISOCS-Est.-270 °	46,2 ± 3,6	0,64 ± 0,08	68,2 ± 8,0
ISOCS-Est.-300 °	56,0 ± 4,2	0,80 ± 0,10	83,4 ± 9,4
Media-ISOCS Est-HOMOG	34,8 ± 12,7	1,6 ± 0,9	45,3 ± 23,2

Las incertidumbres están expresadas para un factor de cobertura  $k = 2$ .

En la Figura 64 se ha representado los resultados de la caracterización del bidón heterogéneo mediante la realización de medidas en estático para distintos ángulos. Como se puede apreciar el bidón presenta heterogeneidad radial apreciable en relación con el  $^{137}\text{Cs}$ .

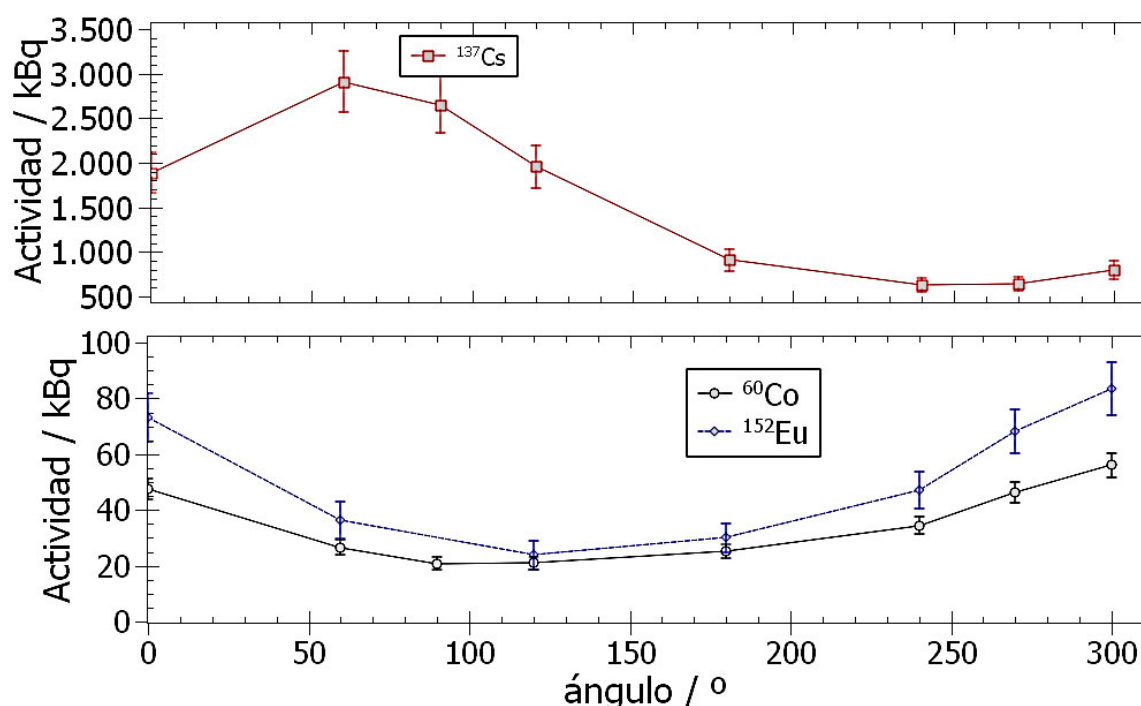


Figura 64. Actividad del bidón heterogéneo de una IR determinado en distintos ángulos.

En la Tabla XXXII se recogen los resultados obtenidos con las metodología homogénea realizada con giro (ISOCS-HOMOG), los estimados por la instalación generadora del bulto de acuerdo con los procedimientos internos de los laboratorios establecidos según lo expuesto en el Plan General de Residuos Radiactivos del CIEMAT y mediante la técnica segmentada (SGS). Se observa que los valores de  $^{137}\text{Cs}$  y  $^{152}\text{Eu}$  obtenidos mediante la metodología

HOMOG haciendo uso de ISOCS son estadísticamente comparables y están solapados para un factor de cobertura de  $k = 2$  con los estimados por la instalación que ha generado el bulto. En lo que respecta al  $^{60}\text{Co}$  se observan discrepancias entre las tres metodologías. Se sabe que las discrepancias en este tipo de bultos pueden llegar al 100 % [43]. Mediante la técnica segmentada (SGS), los resultados obtenidos presentan unos valores muy discrepantes en todos los radionucleidos con los estimados por la instalación así como con los obtenidos mediante la metodología HOMOG.

Tabla XXXII. Caracterización de bidón heterogéneo con residuos tecnológicos mediante distintas metodologías.

Técnica	$^{60}\text{Co}$ (kBq)	$^{137}\text{Cs}$ (MBq)	$^{152}\text{Eu}$ (kBq)
CIEMAT-50 ISOCS-HOMOG	$35,9 \pm 3,0$	$1,50 \pm 0,3$	$48,9 \pm 6,8$
ESTIMADA	$846,0 \pm 207,2$	$0,94 \pm 0,3$	$50,4 \pm 10,3$
CIEMAT SGS	$88,7 \pm 2,0$	$3,73 \pm 0,2$	$135 \pm 3,0$

Las incertidumbres están expresadas para un factor de cobertura  $k = 2$ .

La determinación de la actividad de un bulto heterogéneo es complicada de evaluar y conlleva elevadas incertidumbres [38, 57, 79, 101, 130, 131], sin embargo los resultados obtenidos mediante la metodología presentada en este trabajo de investigación son satisfactorios.

Además los valores de la media obtenidos en estático (última fila de la Tabla XXXI) son también estadísticamente comparables con los correspondientes a la metodología HOMOG realizada con giro y registrados en la Tabla XXXII (primera fila). Por tanto se ratifica que los resultados obtenidos realizando la medida en dinámico y aplicando la eficiencia bidón homogéneo (ISOCS-HOMOG) son estadísticamente comparables a los obtenidos para un conjunto de medidas realizadas en estático a distintos ángulos. En este caso, se confirma un ahorro de tiempo del orden de un 90 % al realizar las medidas en rotación. Y por otra parte mediante la realización de la medida con rotación se solventan los problemas ocasionados por la heterogeneidad que presenta el bulto.

#### 4.5.4 Conclusiones parciales

##### 4.5.4.1 Conclusiones de la caracterización de bultos

- La caracterización de bultos con materiales residuales mediante espectrometría y con ISOCS, se realizará teniendo en cuenta la homogeneidad del material residual así como su densidad.
- La determinación de la actividad de un bulto con materiales residuales homogéneos se realizará utilizando la eficiencia determinada con el tratamiento HOMOG.
- La determinación de la actividad de un bulto conteniendo materiales residuales con densidades  $< 1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  y cuya distribución de actividad sea desconocida, se realizará utilizando la eficiencia determinada con el tratamiento HOMOG y mediante rotación del bulto.



- En el caso de bultos de materiales residuales con distribución de actividad heterogénea y desconocida, y con densidades  $> 1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ , en este caso la determinación de actividad se realizará utilizando la metodología heterogénea, concretamente la metodología EMPY.
- La actividad determinada según la metodología heterogénea EMPY presenta una incertidumbre elevada debido al desconocimiento que se tiene de la distribución de la actividad en el bulto. Además, debido a los procesos de atenuación que se producen al incrementarse la densidad, la precisión en la determinación de la actividad decrece.

#### 4.5.4.2 Conclusiones de la validación de bultos homogéneos

- Los valores de actividad obtenidos en la validación interna y en la validación externa de bultos homogéneos fueron satisfactorios tanto para los ensayos con rotación uniforme del bulto como para los realizados en estático. Se demuestra por tanto que el bulto homogéneo se puede caracterizar con una medida en dinámico, y se verifica su homogeneidad con varias medidas en estático a diferentes ángulos.

#### 4.5.4.3 Conclusiones de la validación de bultos heterogéneos

- Los valores de actividad obtenidos en la validación interna para el bulto heterogéneo con densidad  $> 1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  fueron satisfactorios aplicando la metodología heterogénea con la eficiencia media ponderada intermedia (EMPY).
- Los resultados obtenidos en la caracterización del bulto heterogéneo con densidad  $< 1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  procedente de una IR del CIEMAT realizando la medida en dinámico y aplicando la eficiencia del bidón homogéneo (ISOCS-HOMOG) son estadísticamente comparables a los obtenidos para un conjunto de medidas realizadas en estático a distintos ángulos. En este caso, se confirma por tanto un ahorro de tiempo del orden de un 90 % al realizar las medidas en rotación. Y por otra parte mediante la realización de la medida del bulto en rotación se solventan los problemas ocasionados por la heterogeneidad que presenta el bulto.
- Las medidas realizadas en estático a diferentes ángulos dan una idea de ubicación de los máximos de actividad en el bulto.
- Los resultados obtenidos en la determinación de la actividad del bulto heterogéneo de la IR con la metodología ISOCS-HOMOG son comparables con los estimados por la instalación generadora del bulto. Mientras que los obtenidos mediante la técnica SGS presentan elevadas discrepancias con las dos técnicas restantes: la estimada por la instalación y la presentada en este trabajo de investigación.
- Se confirma que la determinación de la actividad de un bulto conteniendo materiales residuales con densidades  $< 1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  y cuya distribución de actividad sea desconocida (heterogénea) se puede realizar utilizando la eficiencia determinada con el tratamiento HOMOG (metodología ISOCS-HOMOG).

## 4.6 Aplicación a materiales residuales PIMIC

Las actuaciones del proyecto PIMIC-R suponen la producción de materiales residuales sólidos. La optimización en la producción de dichos materiales, así como la minimización en la producción de residuos radiactivos, son factores de gran importancia debido a su repercusión económica.

La caracterización radiológica de estos materiales residuales puede requerir su consideración como residuos radiactivos, en cuyo caso se aplica el Plan de Gestión de Residuos Radiactivos del CIEMAT y su retirada por ENRESA como gestor autorizado de residuos radiactivos. Sin embargo, una parte elevada de estos materiales residuales con contenido radiactivo, son susceptibles de ser gestionados como residuos convencionales sin necesidad de un control radiológico posterior, mediante un proceso de desclasificación.

En los últimos años se han realizado diversas campañas de sondeos y estudios de caracterización radiológica de los terrenos de la Parcela J (Proyecto PIMIC-R), con el fin de acotar las zonas afectadas por la contaminación existente, y determinar los niveles de concentración de actividad en los materiales residuales generados durante el proceso de rehabilitación.

La contaminación existente actualmente en la Parcela J, es de tipo residual y se debe a la presencia de los radionucleidos artificiales  $^{137}\text{Cs}$  y  $^{90}\text{Sr}$ . La caracterización radiológica de las muestras recogidas durante la campaña 2013-2014, ha permitido la toma de decisiones sobre los materiales residuales generados, con el objeto de gestionarlos adecuadamente en base a los resultados obtenidos. De forma que, para aquellos materiales en los que se ha confirmado que su contenido radiactivo es inferior a los niveles de desclasificación autorizados, éstos dejarán de estar sometidos al control regulador, y su evacuación se procederá por vía convencional, lo que supone un importante ahorro económico. Y para aquellos materiales en los que se han superado los niveles de desclasificación autorizados, se gestionaran como residuos radiactivos.

En este apartado se ha establecido una metodología para la caracterización de los materiales residuales generados en los trabajos de rehabilitación de la Parcela J. La caracterización se ha realizado haciendo uso de la técnica de espectrometría  $\gamma$  *in situ* con ISOCS de Canberra y del contador proporcional de flujo continuo de gas, marca Protean, modelo MPC-9604. Dicha metodología ha sido validada mediante la realización de separaciones radioquímicas y su posterior análisis con la técnica de centelleo líquido, así como mediante espectrometría  $\gamma$  de otros laboratorios del CIEMAT.

En los terrenos de "La Lenteja" (Parcela J), coexisten dos zonas radiológicamente diferentes, el Foco Central de la Lenteja (FCL) y el Pozo A de la Lenteja (PAL). En el año 2010, se definieron las relaciones isotópicas  $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$  para las zonas PAL y FCL que son claramente diferentes y se determinaron unos niveles de acción dependientes del isotópico asignado al material, siendo el radionucleido llave el  $^{137}\text{Cs}$  [132].

El isotópico tipo es el tanto por uno de todos los radionucleidos presentes en el material o residuo, tanto emisores  $\alpha$ ,  $\beta$  puros y  $\beta$ - $\gamma$ . El isotópico tipo se elabora a partir de la

Concentración Media de Actividad (media geométrica de las concentraciones de muestras medidas en laboratorio) de cada uno de los emisores presentes en el material o residuo.

Las muestras utilizadas en este estudio han sido tomadas entre noviembre 2013 y enero 2014, y provienen de la zona denominada Foco Central de "La Lenteja" (FCL). La caracterización radiológica de las mismas se ha realizado en el Laboratorio de Preparación de Muestras (LPM), y para su validación también han sido caracterizadas por otros laboratorios pertenecientes al CIEMAT:

- Laboratorio de Caracterización de Residuos Radiactivos (LCRR).
- Laboratorio de Medidas de Protección Radiológica (LMPR).

El objetivo final es evaluar el estado de la zona en la actualidad y gestionar adecuadamente los materiales residuales generados en el proceso de rehabilitación.

En la Figura 65 se enumeran todas las técnicas que se han utilizado en la caracterización de materiales desclasificables.

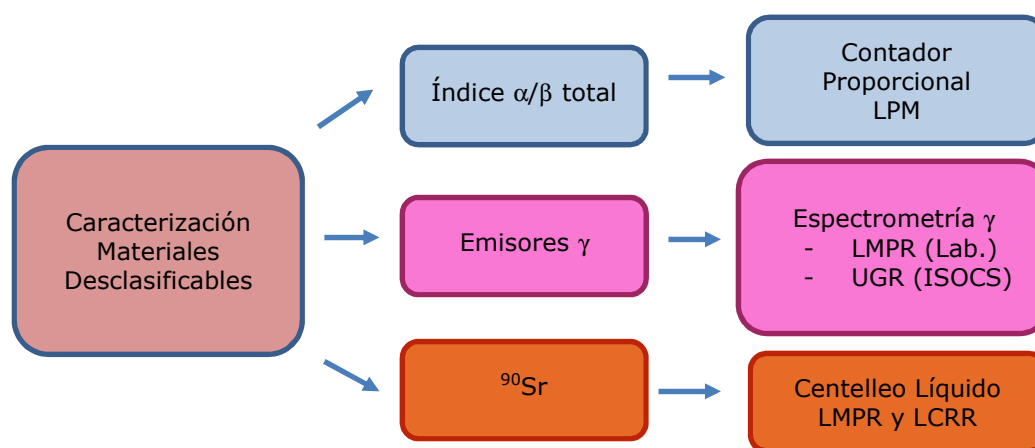


Figura 65. Técnicas y análisis utilizados en la caracterización de materiales desclasificables.

Las muestras fueron acondicionadas en el Laboratorio de Preparación de Muestras (LPM), y posteriormente se procedió a la distribución de alícuotas a los distintos laboratorios que participaron en su caracterización. Los radionucleidos e índices que se determinaron son los que figuran en la Tabla XXXIII.

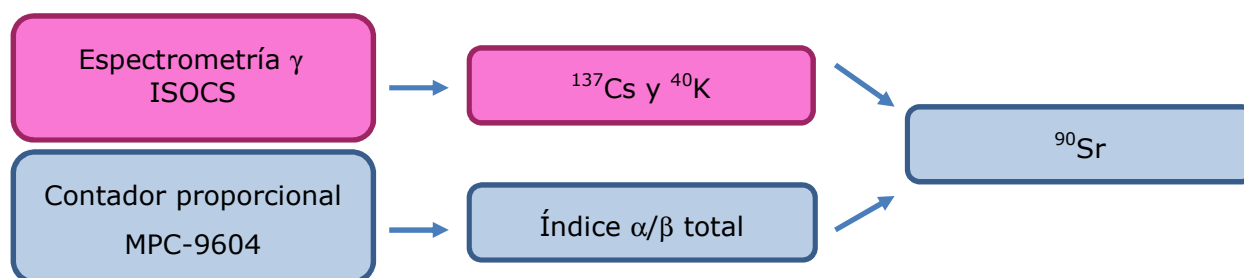
Los índices de actividad  $\alpha$  y  $\beta$  total fueron determinados en el propio LPM, mediante el contador proporcional de flujo continuo de gas de bajo fondo radiactivo, marca Protean, modelo MPC-9604. La determinación de  $^{137}\text{Cs}$  se realizó mediante la técnica de espectrometría  $\gamma$  *in situ* con ISOCS y en laboratorio. Y la determinación del  $^{90}\text{Sr}$ , se realizó mediante separación radioquímica y posterior medida con la técnica de centelleo líquido.

La determinación de los emisores  $\beta/\gamma$  mediante la técnica de espectrometría  $\gamma$  *in situ* con ISOCS, se realizó acondicionando un bidón pequeño de 0,066 m<sup>3</sup> de acero inoxidable con todas las muestras tratadas, procediendo a su caracterización mediante espectrometría  $\gamma$  no destructiva como ya se ha comentado en el apartado 4.5.1.

Tabla XXXIII. Radionucleidos e índices de actividad determinados en las muestras sólidas provenientes de la caracterización de la Parcela J.

Radionucleido/índice	Tipo de radiación	Periodo (años)
$^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$	$\beta$	28,79
$^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$	$\beta/\gamma$	30,07
AT	$\alpha$	-
BT	$\beta$	-

La caracterización de materiales residuales con la metodología propuesta en este trabajo de investigación, se realiza mediante la determinación de los índices de actividad  $\alpha$  y  $\beta$  total con el contador proporcional de flujo continuo de bajo fondo radiactivo, marca Protean, modelo MPC-9604 y la determinación de emisores  $\beta/\gamma$  mediante análisis por espectrometría  $\gamma$  *in situ* con ISOCS (Figura 66).

Figura 66. Esquema del procedimiento para la estimación del  $^{90}\text{Sr}$ .

La contaminación residual existente en la zona de estudio, "La Lenteja", se debe a la presencia de los radionucleidos artificiales  $^{137}\text{Cs}$  y  $^{90}\text{Sr}$ . La contaminación procedente del  $^{137}\text{Cs}$ , se determinó mediante espectrometría  $\gamma$  *in situ* con ISOCS y la del  $^{90}\text{Sr}$  se estimó mediante el índice de actividad  $\beta$  total con el contador proporcional MPC-9604, que indica la presencia de todas las emisiones  $\beta$  existentes en la muestra analizada, referidas al patrón de  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ .

Las emisiones  $\beta$  presentes en la muestra se corresponden fundamentalmente al  $^{40}\text{K}$  procedente del fondo natural y al  $^{90}\text{Sr}$  y  $^{137}\text{Cs}$  debidos a la contaminación residual existente en la zona de estudio.

La concentración de  $^{90}\text{Sr}$  se estima mediante la expresión 27.

$$[^{90}\text{Sr}]_{\text{EST}} = \frac{\text{BT} - [^{137}\text{Cs}] - [^{40}\text{K}]}{2} \quad <27>$$

donde,

$[^{90}\text{Sr}]_{\text{EST}}$  es la concentración de actividad estimada del  $^{90}\text{Sr}$ , en  $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ ;

BT es el índice de actividad  $\beta$  total, en  $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ ;

$[^{137}\text{Cs}]$  es la concentración de actividad del  $^{137}\text{Cs}$ , determinada por espectrometría  $\gamma$  *in situ* en  $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ ;

$[^{40}\text{K}]$  es la concentración de actividad del  $^{40}\text{K}$  procedente del fondo natural y determinada por espectrometría  $\gamma$ , en  $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ .

En esta estimación de la concentración de actividad del  $^{90}\text{Sr}$  mediante la ecuación 27, se considera el equilibrio secular del  $^{90}\text{Sr}$  con el  $^{90}\text{Y}$ . En la contribución del  $^{137}\text{Cs}$ , se considera sólo el porcentaje correspondiente a la emisión  $\gamma$  que tiene lugar por el  $^{137\text{m}}\text{Ba}$  y que se produce en un 84 %. Por otra parte, la contribución del  $^{40}\text{K}$  se corresponde a la parte que procede del fondo natural existente en la zona de estudio [133].

Una vez determinadas las concentraciones de actividad del  $^{137}\text{Cs}$  y el  $^{90}\text{Sr}$ , se procede a la verificación del isotópico de las muestras, y se comprueba si el mismo se corresponde con FCL (foco central de "La Lenteja"), de acuerdo con el Procedimiento de asignación isotópica y clasificación inicial de tierras de la Lenteja del Proyecto PIMIC-Desmantelamiento, [132].

La metodología propuesta se valida mediante la técnica de centelleo líquido para la determinación del  $^{90}\text{Sr}$ , y con espectrometría  $\gamma$  de laboratorio para la determinación del  $^{137}\text{Cs}$ .

#### 4.6.1 Caracterización y discusión

Partiendo de la definición de índice de actividad  $\beta$  total, que indica la presencia de todas las emisiones  $\beta$  existentes en la muestra referidas al patrón de  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ , si se aplica a la zona de estudio, supone que al índice  $\beta$  total contribuyen los radionucleidos artificiales presentes en la zona de La Lenteja ( $^{90}\text{Sr}$  y  $^{137}\text{Cs}$ , Parcela J), además del  $^{40}\text{K}$  presente en la naturaleza y los provenientes de las series radiactivas naturales del  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{235}\text{U}$  y  $^{238}\text{U}$ . De esta forma, mediante la determinación del índice de actividad  $\beta$  total se va a tener una idea del grado de contaminación existente, así como de la posibilidad de tratar los materiales residuales como desclasificables o como residuos radiactivos.

La actividad mínima detectable para poder proceder a la desclasificación incondicional, de acuerdo con el Plan de Control de Materiales Desclasificables procedentes del Proyecto PIMIC-R [48], debe ser menor que el 50 % del nivel de desclasificación, y el nivel de desclasificación incondicional correspondiente al  $^{90}\text{Sr}$  y al  $^{137}\text{Cs}$ , conforme con los criterios establecidos por la Comisión Europea en la publicación "Radiation Protection 122 part 1: Practical Use of the Concepts of Clearance and Exemption" [7], es de  $1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ .

Para diferenciar en el área de "La Lenteja" entre zona impactada y no impactada, teniendo en cuenta que la concentración de  $^{40}\text{K}$  debida al fondo natural es del orden de  $1,2 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$  [133], se establece un valor crítico para el índice de actividad  $\beta$  total de  $2,5 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$  [134]. La superación de ese valor crítico daría lugar a la consideración de zona impactada (zona para la cual mediante un proceso de categorización no puede ser clasificada como zona no impactada). Para las muestras que no superen este valor crítico, la estimación del  $^{90}\text{Sr}$  se puede realizar de acuerdo con la expresión 27. Además si la actividad del  $^{137}\text{Cs}$  obtenida por espectrometría  $\gamma$  no supera el 50 % del valor de desclasificación permitido

( $\text{ND1}^{137}_{\text{Cs}} = 1 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ ), en esta situación, los materiales se podrían desclasificar y por tanto se podrían gestionar como material convencional. En caso de que el índice de actividad  $\beta$  total superase el valor crítico de  $2,5 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ , implicaría la existencia de una contribución de emisores  $\beta$  artificiales ( $^{90}\text{Sr}$  y  $^{137}\text{Cs}$ ), que no permitiría la desclasificación del material, pasando en este caso a su clasificación y gestión como residuo radiactivo.

#### 4.6.1.1 Índice de actividad $\beta$ total

Los resultados experimentales del índice de actividad  $\beta$  total de las muestras provenientes de la Parcela J, determinados con el contador proporcional de flujo continuo de gas MPC-9604 en el Laboratorio de Preparación de Muestras se recogen en la Tabla XXXIV. Se puede apreciar en el conjunto de los resultados obtenidos para el índice de actividad  $\beta$  total, que la mayoría de las muestras presentan un índice que oscila entre 1 y  $2 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ . Sin embargo, existen unas muestras en las que el valor de concentración del índice de actividad  $\beta$  total es más elevado que el resto. Estas muestras estarían indicando que la zona a la que corresponden está impactada o bien la necesidad de tener que realizar una modificación en el isotópico asignado a las mismas (de FCL a PAL).

Tabla XXXIV. Resultados del índice de actividad  $\beta$  total (BT).

Referencia	BT ( $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ )	Referencia	BT ( $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ )	Referencia	BT ( $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ )
13-0064	$29,8 \pm 3,8$	14-0015	$1,4 \pm 0,2$	14-0041	$1,4 \pm 0,2$
13-0065	$22,9 \pm 2,9$	14-0016	$1,4 \pm 0,2$	14-0042	$1,3 \pm 0,2$
13-0066	$35,2 \pm 4,5$	14-0017	$1,4 \pm 0,2$	14-0043	$1,4 \pm 0,2$
13-0067	$40,8 \pm 5,2$	14-0018	$1,6 \pm 0,2$	14-0044	$1,4 \pm 0,2$
13-0068	$1,5 \pm 0,2$	14-0019	$0,8 \pm 0,1$	14-0045	$1,4 \pm 0,2$
13-0069	$1,3 \pm 0,2$	14-0020	$3,8 \pm 0,5$	14-0046	$1,4 \pm 0,2$
13-0070	$1,5 \pm 0,2$	14-0021	$1,9 \pm 0,2$	14-0054	$2,3 \pm 0,3$
13-0071	$2,5 \pm 0,3$	14-0022	$1,3 \pm 0,2$	14-0055	$1,6 \pm 0,2$
13-0072	$1,5 \pm 0,2$	14-0023	$16,1 \pm 2,0$	14-0056	$1,5 \pm 0,2$
13-0073	$1,4 \pm 0,2$	14-0024	$1,5 \pm 0,2$	14-0057	$1,5 \pm 0,2$
13-0074	$1,5 \pm 0,2$	14-0025	$1,7 \pm 0,2$	14-0058	$1,3 \pm 0,2$
13-0075	$0,5 \pm 0,1$	14-0026	$1,4 \pm 0,2$	14-0059	$1,5 \pm 0,2$
13-0076	$1,6 \pm 0,2$	14-0027	$1,6 \text{E} \pm 0,2$	14-0060	$1,5 \pm 0,2$
13-0077	$0,7 \pm 0,1$	14-0028	$2,1 \pm 0,2$	14-0061	$1,5 \pm 0,2$
13-0078	$1,4 \pm 0,2$	14-0029	$1,9 \pm 0,2$	14-0062	$1,6 \pm 0,2$
14-0006	$1,4 \pm 0,2$	14-0030	$2,1 \pm 0,3$	14-0063	$1,5 \pm 0,2$
14-0007	$1,6 \pm 0,2$	14-0031	$2,1 \pm 0,3$	14-0064	$1,5 \pm 0,2$
14-0008	$1,4 \pm 0,2$	14-0032	$1,4 \pm 0,2$	14-0065	$1,6 \pm 0,2$
14-0009	$1,2 \pm 0,1$	14-0033	$1,8 \pm 0,2$	14-0066	$1,2 \pm 0,2$
14-0010	$1,5 \pm 0,2$	14-0034	$1,5 \pm 0,2$	14-0067	$1,4 \pm 0,2$
14-0012	$3,5 \pm 0,1$	14-0035	$1,2 \pm 0,2$	14-0068	$1,5 \pm 0,2$
14-0013	$1,7 \pm 0,2$	14-0039	$1,6 \pm 0,2$	14-0069	$1,8 \pm 0,2$
14-0014	$1,5 \pm 0,2$	14-0040	$1,5 \pm 0,2$		

Las incertidumbres están expresadas para un factor de cobertura  $k = 2$ .

#### 4.6.1.2 $^{137}\text{Cs}$ por espectrometría $\gamma$ de laboratorio

Los resultados obtenidos para el  $^{137}\text{Cs}$  mediante la técnica de espectrometría  $\gamma$  de laboratorio, se recogen en la Tabla XXXV.

Del conjunto de resultados obtenidos, se aprecia que la presencia de  $^{137}\text{Cs}$  se detecta en pocas muestras, siendo además la concentración de actividad en dichos casos muy baja, y en el resto de las muestras, los niveles están por debajo de la actividad mínima detectable.

Tabla XXXV. Concentración de actividad de  $^{137}\text{Cs}$  mediante espectrometría  $\gamma$  de laboratorio.

Referencia	$^{137}\text{Cs}$ ( $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ )	Referencia	$^{137}\text{Cs}$ ( $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ )	Referencia	$^{137}\text{Cs}$ ( $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ )
13-0064	< 9,30E-04	14-0015	1,61E-03 $\pm$ 3,50E-04	14-0041	< 2,34E-03
13-0065	1,89E-03 $\pm$ 1,27E-03	14-0016	1,53E-03 $\pm$ 3,50E-04	14-0042	< 1,44E-03
13-0066	< 9,74E-04	14-0017	< 9,10E-04	14-0043	< 2,05E-03
13-0067	2,11E-02 $\pm$ 1,10E-03	14-0018	2,40E-02 $\pm$ 1,30E-03	14-0044	< 1,55E-03
13-0068	< 8,16E-04	14-0019	4,10E-03 $\pm$ 9,70E-04	14-0045	< 1,59E-03
13-0069	< 2,43E-03	14-0020	2,62E-03 $\pm$ 7,50E-04	14-0046	< 2,24E-03
13-0070	< 2,06E-03	14-0021	< 1,02E-03	14-0054	< 2,37E-03
13-0071	2,58E-02 $\pm$ 2,30E-03	14-0022	1,51E-02 $\pm$ 1,10E-03	14-0055	< 1,55E-03
13-0072	< 1,39E-03	14-0023	3,09E-03 $\pm$ 4,70E-04	14-0056	< 1,74E-03
13-0073	< 2,05E-03	14-0024	< 2,28E-03	14-0057	< 1,39E-03
13-0074	< 1,26E-03	14-0025	2,44E-03 $\pm$ 4,70E-04	14-0058	< 3,34E-03
13-0075	3,20E-03 $\pm$ 3,80E-04	14-0026	< 2,00E-03	14-0059	< 1,48E-03
13-0076	< 2,05E-03	14-0027	< 1,30E-03	14-0060	< 1,68E-03
13-0077	1,47E-02 $\pm$ 1,40E-03	14-0028	< 1,59E-03	14-0061	< 2,68E-03
13-0078	< 7,94E-04	14-0029	< 2,16E-03	14-0062	< 2,16E-03
14-0006	< 7,89E-04	14-0030	< 1,28E-03	14-0063	< 2,20E-03
14-0007	< 2,00E-03	14-0031	< 2,00E-03	14-0064	< 1,25E-03
14-0008	< 1,01E-03	14-0032	< 2,19E-03	14-0065	8,38E-03 $\pm$ 3,08E-03
14-0009	1,63E-03 $\pm$ 3,20E-04	14-0033	< 1,42E-03	14-0066	< 2,33E-03
14-0010	1,30E-03 $\pm$ 3,30E-04	14-0034	< 2,00E-03	14-0067	< 1,77E-03
14-0012	6,49E-01 $\pm$ 1,20E-02	14-0035	< 1,16E-03	14-0068	< 1,42E-03
14-0013	6,37E-02 $\pm$ 3,90E-03	14-0039	< 1,49E-03	14-0069	< 1,42E-03
14-0014	< 1,13E-03	14-0040	< 2,65E-03		

Las incertidumbres están expresadas para un factor de cobertura  $k = 2$ .

4.6.1.3  $^{90}\text{Sr}$  mediante centelleo líquido

Los resultados obtenidos para el  $^{90}\text{Sr}$  mediante la técnica de centelleo líquido, se recogen en la Tabla XXXVI. Estos valores cuantitativos de  $^{90}\text{Sr}$  obtenidos mediante esta técnica se utilizarán para:

- Realizar la validación de las medidas de  $^{90}\text{Sr}$  estimadas con la metodología propuesta.
- Verificar el isotópico.
- Comprobar la extensión de la zona PAL.

Tabla XXXVI. Resultados de la concentración de  $^{90}\text{Sr}$  mediante centelleo líquido.

Referencia	$^{90}\text{Sr}$ (Bq·g <sup>-1</sup> )	Referencia	$^{90}\text{Sr}$ (Bq·g <sup>-1</sup> )	Referencia	$^{90}\text{Sr}$ (Bq·g <sup>-1</sup> )
13-0064	5,74E+00 ± 1,10E-01	14-0015	< 9,09E-02	14-0041	< 1,03E-01
13-0065	9,41E+00 ± 1,90E-01	14-0016	< 9,56E-02	14-0042	< 1,10E-01
13-0066	7,53E+00 ± 1,50E-01	14-0017	< 1,07E-01	14-0043	< 1,24E-01
13-0067	2,03E+01 ± 4,00E-01	14-0018	< 8,05E-02	14-0044	< 1,16E-01
13-0068	< 2,00E-02	14-0019	< 1,06E-01	14-0045	< 1,09E-01
13-0069	< 2,38E-02	14-0020	< 8,84E-02	14-0046	< 1,04E-01
13-0070	< 2,05E-02	14-0021	8,47E-01 ± 8,47E-02	14-0054	5,08E-01 ± 6,60E-02
13-0071	8,20E-02 ± 3,80E-03	14-0022	< 1,46E-01	14-0055	< 9,98E-02
13-0072	3,98E-02 ± 9,00E-03	14-0023	5,63E+00 ± 7,32E-01	14-0056	< 1,00E-01
13-0073	< 3,16E-02	14-0024	< 1,02E-01	14-0057	< 1,14E-01
13-0074	< 3,98E-02	14-0025	< 1,12E-01	14-0058	< 1,43E-01
13-0075	< 3,52E-02	14-0026	< 8,82E-02	14-0059	< 1,48E-01
13-0076	< 3,56E-02	14-0027	< 8,59E-02	14-0060	< 1,10E-01
13-0077	< 2,91E-02	14-0028	< 1,42E-01	14-0061	< 1,23E-01
13-0078	2,03E-01 ± 8,00E-03	14-0029	< 3,88E-01	14-0062	< 1,54E-01
14-0006	< 3,89E-02	14-0030	< 1,54E-01	14-0063	< 1,20E-01
14-0007	< 8,47E-02	14-0031	< 1,38E-01	14-0064	< 1,36E-01
14-0008	< 2,68E-02	14-0032	< 9,83E-02	14-0065	< 1,14E-01
14-0009	< 3,58E-02	14-0033	< 1,13E-01	14-0066	< 1,06E-01
14-0010	< 2,69E-02	14-0034	< 1,09E-01	14-0067	< 9,15E-02
14-0012	5,86E-01 ± 8,79E-02	14-0035	< 8,97E-02	14-0068	< 9,26E-02
14-0013	< 8,63E-02	14-0039	< 1,12E-01	14-0069	< 8,86E-02
14-0014	< 8,63E-02	14-0040	< 1,13E-01		

Las incertidumbres están expresadas para un factor de cobertura  $k = 2$ .

Para el caso en estudio, se observa que la mayoría de las muestras presentan valores que son inferiores a la actividad mínima detectable y solamente algunas muestras registran valores superiores. Además, se aprecia la presencia de unas muestras que presentan



valores anómalamente altos, las cuales se corresponden con las mismas muestras que presentaban un índice de actividad  $\beta$  total elevado. La existencia de esas muestras con valores anómalamente altos, indica que la zona a la que pertenecen está impactada o bien sugiere la necesidad de reasignar el isotópico establecido para dichas muestras.

#### 4.6.1.4 $^{90}\text{Sr}$ obtenido mediante el índice de actividad $\beta$ total

Los resultados obtenidos para el  $^{90}\text{Sr}$  mediante la metodología propuesta en este trabajo a través del índice de actividad  $\beta$  total (expresión 27), se recogen en la Tabla XXXVII.

Tabla XXXVII. Resultados de la concentración de  $^{90}\text{Sr}$  mediante la metodología propuesta en este trabajo.

Referencia	$^{90}\text{Sr}$ ( $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ ) (BT)	Referencia	$^{90}\text{Sr}$ ( $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ ) (BT)	Referencia	$^{90}\text{Sr}$ ( $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ ) (BT)
13-0064	$1,43\text{E}+01 \pm 3,80\text{E}+00$	14-0015	$5,42\text{E}-02 \pm 1,83\text{E}-01$	14-0041	$1,65\text{E}-01 \pm 1,84\text{E}-01$
13-0065	$1,09\text{E}+01 \pm 2,90\text{E}+00$	14-0016	$1,04\text{E}-01 \pm 1,80\text{E}-01$	14-0042	$3,00\text{E}-02 \pm 1,70\text{E}-01$
13-0066	$1,71\text{E}+01 \pm 4,46\text{E}+00$	14-0017	$7,50\text{E}-02 \pm 1,79\text{E}-01$	14-0043	$7,50\text{E}-02 \pm 1,79\text{E}-01$
13-0067	$1,99\text{E}+01 \pm 5,18\text{E}+00$	14-0018	$1,78\text{E}-01 \pm 2,01\text{E}-01$	14-0044	$1,00\text{E}-01 \pm 1,82\text{E}-01$
13-0068	$2,05\text{E}-01 \pm 1,94\text{E}-01$	14-0019	$2,95\text{E}-02 \pm 1,09\text{E}-01$	14-0045	$4,43\text{E}-02 \pm 1,76\text{E}-01$
13-0069	$8,00\text{E}-02 \pm 1,71\text{E}-01$	14-0020	$1,37 \pm 4,84\text{E}-01$	14-0046	$2,92\text{E}-02 \pm 1,84\text{E}-01$
13-0070	$1,80\text{E}-01 \pm 1,96\text{E}-01$	14-0021	$3,05\text{E}-01 \pm 2,46\text{E}-01$	14-0054	$5,35\text{E}-01 \pm 2,98\text{E}-01$
13-0071	$6,75\text{E}-01 \pm 3,21\text{E}-01$	14-0022	$4,52\text{E}-01 \pm 1,70\text{E}-01$	14-0055	$1,69\text{E}-01 \pm 2,05\text{E}-01$
13-0072	$1,60\text{E}-01 \pm 1,88\text{E}-01$	14-0023	$7,60 \pm 2,04$	14-0056	$8,91\text{E}-02 \pm 1,91\text{E}-01$
13-0073	$1,20\text{E}-01 \pm 1,79\text{E}-01$	14-0024	$9,16\text{E}-02 \pm 1,91\text{E}-01$	14-0057	$1,47\text{E}-01 \pm 1,92\text{E}-01$
13-0074	$1,00\text{E}-01 \pm 1,89\text{E}-01$	14-0025	$2,30\text{E}-01 \pm 2,12\text{E}-01$	14-0058	-
13-0075	$7,50\text{E}-02 \pm 7,09\text{E}-02$	14-0026	$7,26\text{E}-02 \pm 1,83\text{E}-01$	14-0059	$1,48\text{E}-01 \pm 1,94\text{E}-01$
13-0076	$2,05\text{E}-01 \pm 2,06\text{E}-01$	14-0027	$1,38\text{E}-01 \pm 2,01\text{E}-01$	14-0060	$1,77\text{E}-01 \pm 1,95\text{E}-01$
13-0077	$6,85\text{E}-02 \pm 9,26\text{E}-02$	14-0028	$4,18\text{E}-01 \pm 2,68\text{E}-01$	14-0061	$2,15\text{E}-01 \pm 1,94\text{E}-01$
13-0078	$8,50\text{E}-02 \pm 1,82\text{E}-01$	14-0029	$2,72\text{E}-01 \pm 2,41\text{E}-01$	14-0062	$1,95\text{E}-01 \pm 2,05\text{E}-01$
14-0006	$1,10\text{E}-01 \pm 1,85\text{E}-01$	14-0030	$3,96\text{E}-01 \pm 2,65\text{E}-01$	14-0063	$1,51\text{E}-01 \pm 1,89\text{E}-01$
14-0007	$2,25\text{E}-01 \pm 2,00\text{E}-01$	14-0031	$4,28\text{E}-01 \pm 2,72\text{E}-01$	14-0064	$1,38\text{E}-01 \pm 1,93\text{E}-01$
14-0008	$6,50\text{E}-02 \pm 1,74\text{E}-01$	14-0032	$6,00\text{E}-02 \pm 1,81\text{E}-01$	14-0065	$1,79\text{E}-01 \pm 2,00\text{E}-01$
14-0009	$2,50\text{E}-02 \pm 1,54\text{E}-01$	14-0033	$2,40\text{E}-01 \pm 2,22\text{E}-01$	14-0066	-
14-0010	$1,10\text{E}-01 \pm 1,92\text{E}-01$	14-0034	$2,00\text{E}-01 \pm 1,95\text{E}-01$	14-0067	$1,72\text{E}-01 \pm 1,83\text{E}-01$
14-0012	$1,16\text{E}+00 \pm 4,52\text{E}-01$	14-0035	-	14-0068	$1,21\text{E}-01 \pm 1,90\text{E}-01$
14-0013	$2,53\text{E}-01 \pm 2,20\text{E}-01$	14-0039	$1,40\text{E}-01 \pm 2,02\text{E}-01$	14-0069	$3,24\text{E}-01 \pm 2,29\text{E}-01$
14-0014	$1,70\text{E}-01 \pm 1,92\text{E}-01$	14-0040	$1,20\text{E}-01 \pm 1,91\text{E}-01$		

Las incertidumbres están expresadas para un factor de cobertura  $k = 2$ .

En la Figura 67 se han representado los valores obtenidos para el  $^{90}\text{Sr}$  mediante la técnica de centelleo líquido frente a los valores de  $^{90}\text{Sr}$  determinados mediante la metodología propuesta. En general los valores del  $^{90}\text{Sr}$  obtenidos mediante la técnica de

centelleo líquido son muy bajos, correspondiendo en la mayoría de los casos con niveles inferiores a la actividad mínima detectada. En dicha figura se observa como la relación existente entre el  $^{90}\text{Sr}$  estimado con la metodología propuesta presenta una sobreestimación sobre el  $^{90}\text{Sr}$  determinado mediante la técnica de centelleo líquido.

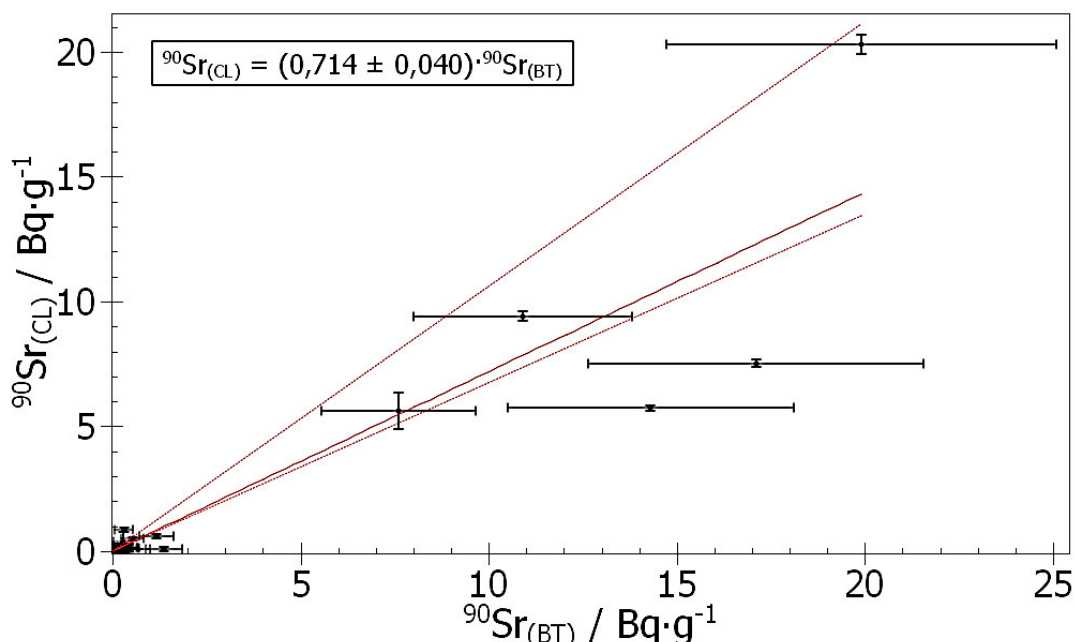


Figura 67. Relación de las concentraciones de  $^{90}\text{Sr}$  obtenidas mediante centelleo líquido y mediante el índice de actividad  $\beta$  total.

#### 4.6.2 Análisis estadístico de los resultados de las muestras experimentales

Las concentraciones de actividad de radionucleidos en las corrientes de residuos se ha comprobado que siguen generalmente una distribución lognormal, es decir, los logaritmos de las concentraciones siguen una distribución normal [135].

Si existe una relación entre dos variables que siguen una distribución normal, la única posibilidad es la dependencia lineal [136]. Por lo que si el radionucleido de difícil medida ( $^{90}\text{Sr}$ ), depende del radionucleido llave ( $^{137}\text{Cs}$ ), y los logaritmos de las concentraciones siguen una distribución normal, ambos correlacionan linealmente en escala logarítmica.

A continuación, con los resultados obtenidos mediante el contador proporcional se va a realizar la comprobación de distribución normal para el índice de actividad  $\beta$  total. De forma que si se cumple que el índice de actividad  $\beta$  total sigue una distribución normal, la dependencia entre el índice de actividad  $\beta$  total y las concentraciones de  $^{137}\text{Cs}$  y  $^{90}\text{Sr}$  será lineal.

Los resultados experimentales disponibles correspondientes al índice de actividad  $\beta$  total, se han analizado para la identificación de datos anómalos mediante criterios estadísticos, concretamente mediante la prueba del contraste de Grubbs que está diseñada para distribuciones normales, haciendo uso del estadístico G,

$$G = \frac{\max |x_i - \bar{x}|}{\sigma} \quad <28>$$

donde,

$x_i$  es el valor analizado;

$\bar{x}$  es la media muestral;

$\sigma$  es la desviación típica muestral.

Para  $G > 2,58$  (siendo el factor de cobertura  $k = 2$ ), el valor  $x_i$  se puede rechazar.

Una vez analizados y revisados todos los resultados obtenidos para el índice de actividad  $\beta$  total y eliminados los datos anómalos, los resultados se han representado gráficamente mediante un software de análisis estadístico, SPSS Statistics Ed. 20 de IBM [137]. Como puede observarse en la Figura 68, los resultados del índice de actividad  $\beta$  total, siguen una distribución normal.

A partir de los datos de la Figura 68, se han representado los gráficos de Probabilidad-Probabilidad (P-P) y Cuantil-Cuantil (Q-Q), con el objeto de efectuar una evaluación semicuantitativa al comparar las distribuciones de probabilidad (Figura 69).

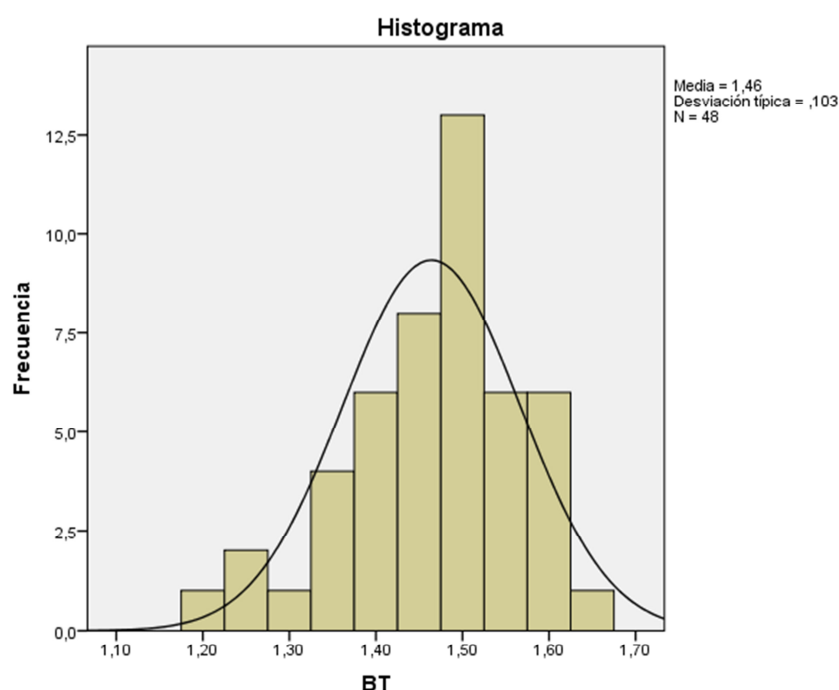


Figura 68. Distribución de los resultados experimentales obtenidos para el índice de actividad  $\beta$  total (BT).

En la Figura 69, se observa que los datos experimentales aparecen distribuidos alrededor de la bisectriz del primer cuadrante, verificándose por tanto que se ajustan a una distribución normal.

Seguidamente, los resultados obtenidos para el  $^{90}\text{Sr}$  mediante la expresión 27 se han representado gráficamente mediante el software anteriormente mencionado [137]. Los valores estimados para el  $^{90}\text{Sr}$  mediante la metodología propuesta se han representado en la Figura 70, y como puede apreciarse, se observa que dichos resultados siguen una distribución normal.

A partir de los datos de la Figura 70, se ha representado el gráfico de Probabilidad-Probabilidad (P-P), Figura 71, observándose como los resultados obtenidos para el  $^{90}\text{Sr}$  a partir del índice de actividad  $\beta$  total, aparecen distribuidos alrededor de la bisectriz del primer cuadrante, verificándose por tanto que se ajustan a una distribución normal.

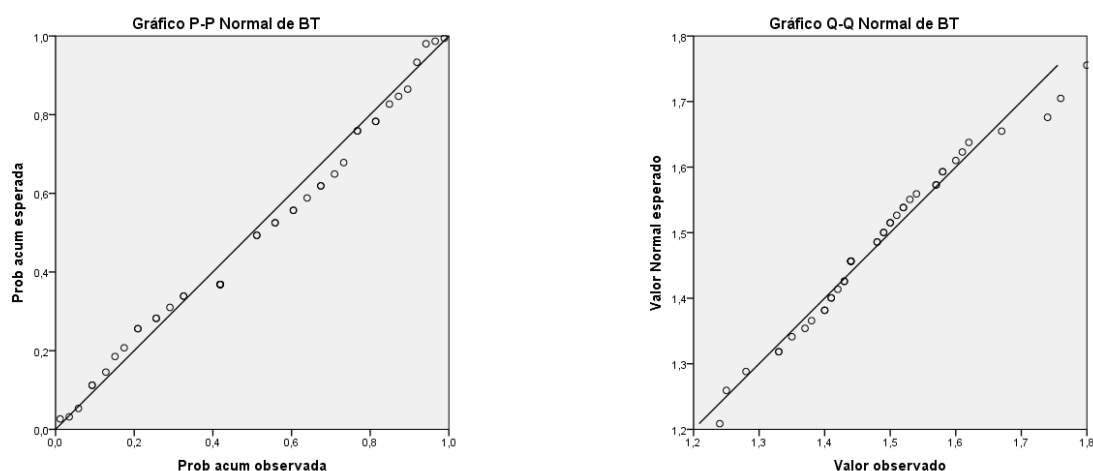


Figura 69. Gráficos P-P y Q-Q para los resultados experimentales obtenidos para BT considerando su distribución normal.

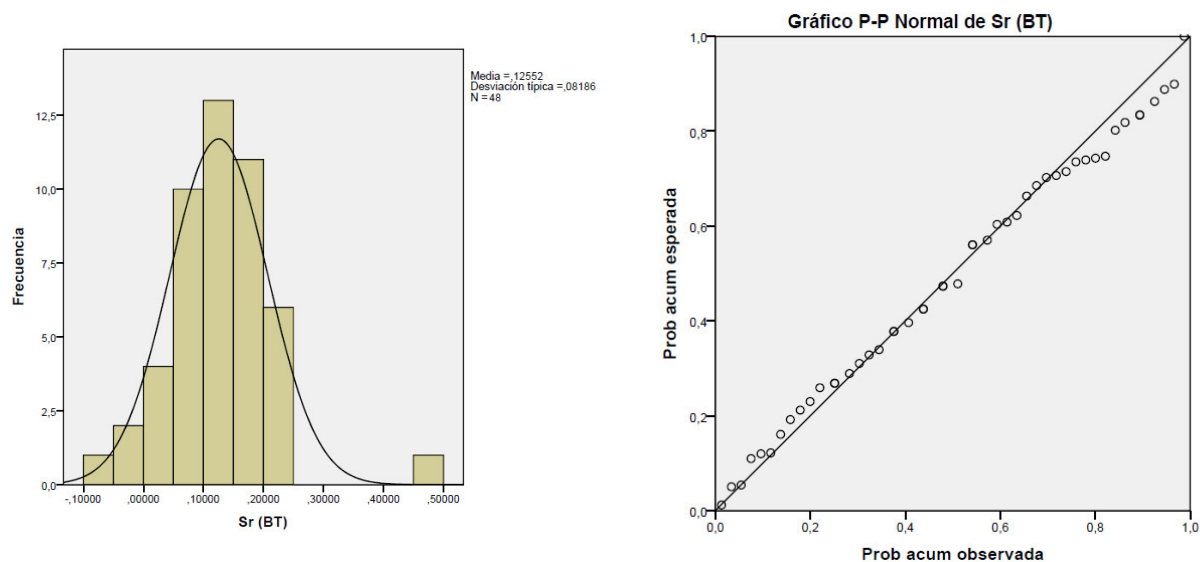


Figura 70. Distribución de los resultados estimados para el  $^{90}\text{Sr}$  mediante la expresión 27.

Figura 71. Gráfico P-P para el  $^{90}\text{Sr}$  obtenido a partir del índice de actividad  $\beta$  total determinado experimentalmente con el contador proporcional de flujo continuo MPC-9604.

En relación con los resultados obtenidos para el  $^{137}\text{Cs}$  mediante la técnica de espectrometría  $\gamma$  de laboratorio, así como para el  $^{90}\text{Sr}$  mediante la técnica de centelleo

líquido, no se ha podido realizar el tratamiento estadístico para la comprobación de datos anómalos, debido a la elevada existencia de muestras que presentaban unos resultados, cuyos valores venían registrados como inferiores a la actividad mínima detectable (AMD).

### 4.6.3 Validación

Con el objeto de validar la metodología propuesta (Figura 66), se realizó por una parte la comparación de los resultados obtenidos para el índice de actividad  $\beta$  total con el contador proporcional MPC-9604 por parte del Laboratorio de Preparación de Muestras (LPM) con muestras de La Lenteja, con los resultados determinados también para el índice de actividad  $\beta$  total por parte del Laboratorio de Caracterización de Residuos Radiactivos (LCRR) para las mismas muestras y también mediante la técnica de contador proporcional; y por otra parte se acondicionó un bidón a escala (BP) con las muestras tomadas en la zona de la Lenteja (Parcela J) con densidad aparente igual a  $0,69 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  y se determinó la actividad del mismo por espectrometría  $\gamma$  con ISOCS. La distribución de la actividad en la matriz era heterogénea, pero al ser la densidad igual a  $0,69 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  (menor de  $1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ), se aplicó el tratamiento homogéneo (HOMOG) según criterio establecido en el apartado 4.5.1.

Por tanto, los resultados del índice de actividad  $\beta$  total de las muestras con las que se preparó el bidón a escala determinados con el contador proporcional MPC-9604 en el LPM fueron validados por el LCRR. Dichos resultados se recogen en la Tabla XXXVIII y se han representado en la Figura 72.

Tabla XXXVIII. Resultados del índice de actividad  $\beta$  total determinados por el LCRR y el LPM.

BT(LCRR)	Inc.(LCRR)	BT(LPM)	Inc.(LPM)
2,88E+01	3,74E+00	2,98E+01	3,80E+00
2,40E+01	9,60E-01	2,29E+01	2,90E+00
3,77E+01	2,26E+00	3,52E+01	4,46E+00
4,48E+01	3,14E+00	4,08E+01	5,18E+00
1,17E+00	2,11E-01	1,51E+00	1,94E-01
1,06E+00	3,60E-01	1,35E+00	1,71E-01
1,28E+00	3,97E-01	1,54E+00	1,96E-01
2,06E+00	3,50E-01	2,53E+00	3,21E-01
2,11E+00	5,06E-01	3,54E+00	4,52E-01
1,67E+00	6,18E-01	1,74E+00	2,20E-01
2,43E+00	6,56E-01	1,44E+00	1,83E-01
1,44E+00	4,03E-01	1,40E+00	1,80E-01
1,38E+00	6,35E-01	1,41E+00	1,79E-01
1,80E+00	6,30E-01	1,58E+00	2,01E-01
1,37E+00	5,21E-01	8,49E-01	1,09E-01
2,61E+00	6,23E-01	1,94E+00	2,46E-01
1,44E+00	2,74E-01	1,44E+00	1,83E-01
1,49E+00	2,68E-01	2,08E+00	2,65E-01
1,65E+00	2,48E-01	1,76E+00	2,22E-01
1,52E+00	2,89E-01	1,33E+00	1,70E-01
1,78E+00	1,42E-01	2,33E+00	2,98E-01
1,38E+00	3,17E-01	1,60E+00	2,05E-01
1,57E+00	3,61E-01	1,49E+00	1,89E-01
1,63E+00	6,85E-01	1,52E+00	1,93E-01
2,00E+00	2,00E-01	1,57E+00	2,00E-01

Las incertidumbres están expresadas para un factor de cobertura  $k = 2$ .

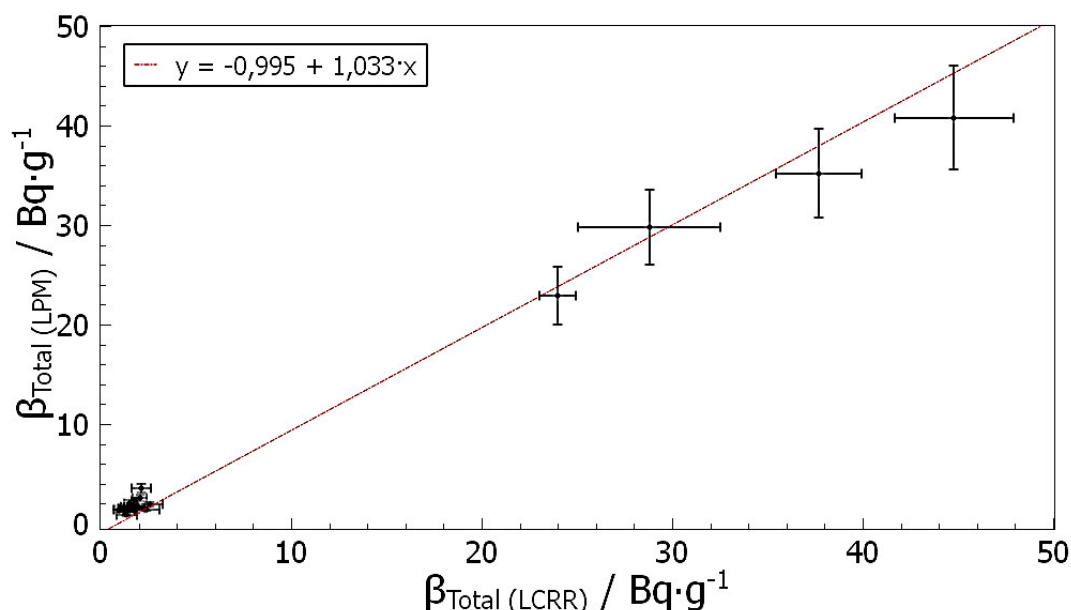


Figura 72. Relación lineal para la validación de los resultados obtenidos para el índice de actividad  $\beta$  total entre los resultados determinados por el LPM y los determinados por el LCRR.

El bidón acondicionado en el LPM con las muestras analizadas fue caracterizado por espectrometría  $\gamma$  *in situ* con ISOCS, determinándose la concentración de actividad del  $^{137}\text{Cs}$  y estableciéndose como tiempo de medida, el tiempo necesario para obtener una medida estable cuya actividad mínima detectable fuese menor al 50 % del valor del nivel de desclasificación correspondiente. Los resultados de concentración de actividad para el  $^{137}\text{Cs}$  del se recogen en la Tabla XXXIX.

Tabla XXXIX. Concentración de actividad de  $^{137}\text{Cs}$  determinada por espectrometría  $\gamma$  con ISOCS del bidón acondicionado para distintos tiempos de medida.

Tiempo (h)	$^{137}\text{Cs}$ ( $\text{Bq} \cdot \text{g}^{-1}$ )	AMD ( $\text{Bq} \cdot \text{g}^{-1}$ )	Tiempo (h)	$^{137}\text{Cs}$ ( $\text{Bq} \cdot \text{g}^{-1}$ )	AMD ( $\text{Bq} \cdot \text{g}^{-1}$ )
1	$1,71\text{E}-02 \pm 2,30\text{E}-03$	$1,9\text{E}-02$	6	$1,37\text{E}-02 \pm 2,10\text{E}-03$	$8,1\text{E}-03$
2	$1,68\text{E}-02 \pm 2,30\text{E}-03$	$1,3\text{E}-02$	7	$1,37\text{E}-02 \pm 2,10\text{E}-03$	$7,4\text{E}-03$
3	$1,54\text{E}-02 \pm 2,20\text{E}-03$	$1,1\text{E}-02$	8	$1,36\text{E}-02 \pm 2,10\text{E}-03$	$7,0\text{E}-03$
4	$1,39\text{E}-02 \pm 2,20\text{E}-03$	$1,0\text{E}-02$	9	$1,35\text{E}-02 \pm 2,10\text{E}-03$	$6,5\text{E}-03$
5	$1,37\text{E}-02 \pm 2,10\text{E}-03$	$8,0\text{E}-03$	10	$1,37\text{E}-02 \pm 2,10\text{E}-03$	$6,1\text{E}-03$

Las incertidumbres están expresadas para un factor de cobertura  $k = 2$ .

A la vista de los resultados obtenidos para el  $^{137}\text{Cs}$  mediante espectrometría  $\gamma$  con ISOCS para los diferentes tiempos de adquisición de medida, se ha considerado que un tiempo de 6 h era un tiempo razonable para la obtención de una medida estable, y además cumple con el requisito necesario para la desclasificación, que es que la AMD sea inferior al 50 % del valor de desclasificación. Por otra parte, un tiempo de 6 h permite la realización de la medida de dos bidones en cada jornada de trabajo.

En la Tabla XL se recogen los valores de actividad del  $^{137}\text{Cs}$  obtenidos mediante espectrometría  $\gamma$  de laboratorio (para las 68 muestras) y el determinado mediante espectrometría  $\gamma$  con ISOCS. Se observa que ambos resultados son estadísticamente comparables, quedando solapados para un factor de cobertura de  $k = 2$ . Por tanto, la determinación del  $^{137}\text{Cs}$  en el bidón con muestras de "La Lenteja" mediante espectrometría  $\gamma$  con ISOCS, presenta unos valores exactos y precisos con los obtenidos mediante espectrometría  $\gamma$  de laboratorio.

Tabla XL. Actividad de  $^{137}\text{Cs}$  determinada mediante espectrometría  $\gamma$  de laboratorio y con ISOCS.

Act. $^{137}\text{Cs}$ (kBq) (Espectrometría $\gamma$ Lab.)	Act. $^{137}\text{Cs}$ (kBq) (Espectrometría $\gamma$ ISOCS)
$0,57 \pm 0,03$	$0,58 \pm 0,04$

Las incertidumbres están expresadas para un factor de cobertura  $k = 2$ .

Por otra parte el  $^{90}\text{Sr}$  se determinó con las técnicas que se recogen en la Figura 73; centelleo líquido y contador proporcional junto con espectrometría  $\gamma$  (ISOCS y laboratorio). El resultado de la determinación del  $^{90}\text{Sr}$  mediante la metodología propuesta (índice de actividad  $\beta$  total y la concentración de  $^{137}\text{Cs}$  obtenida por espectrometría  $\gamma$  con ISOCS aplicado sobre el bidón con las muestras y material sobrante) se comparó con el valor obtenido mediante la técnica de centelleo líquido con el objeto de validar la metodología.

Las técnicas que se utilizaron en la determinación de  $^{90}\text{Sr}$  son las que se recogen en la Figura 73.

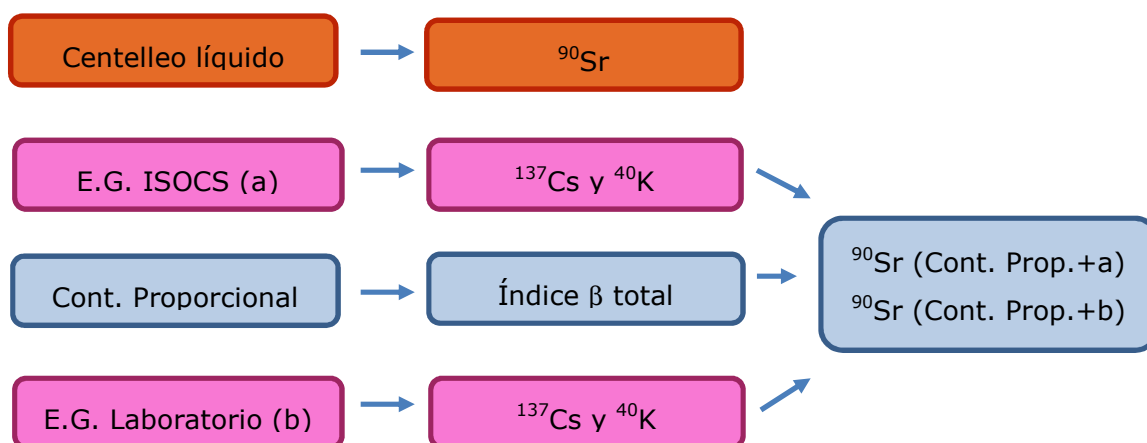


Figura 73. Determinación del  $^{90}\text{Sr}$  mediante diferentes técnicas.

En la Tabla XLI se presentan los resultados de la actividad del  $^{90}\text{Sr}$  determinados con las siguientes metodologías:

- 1ª columna de la Tabla XLI. Haciendo uso de la metodología planteada en este trabajo de investigación, el índice de actividad  $\beta$  total, menos la actividad del  $^{137}\text{Cs}$  y del  $^{40}\text{K}$  determinadas mediante espectrometría  $\gamma$  con ISOCS del bidón, todo ello dividido entre dos, ya que el  $^{90}\text{Sr}$  está en equilibrio secular con su descendiente el  $^{90}\text{Y}$ .

- b. 2ª columna de la Tabla XLI. El índice de actividad  $\beta$  total, menos la actividad del  $^{137}\text{Cs}$  y del  $^{40}\text{K}$  determinadas mediante espectrometría  $\gamma$  de laboratorio, todo ello dividido entre dos, ya que el  $^{90}\text{Sr}$  está en equilibrio secular con su descendiente el  $^{90}\text{Y}$ .
- c. 3ª columna de la Tabla XLI. La actividad del  $^{90}\text{Sr}$  determinada por separación radioquímica y medida por centelleo líquido.

Tabla XLI. Actividad de  $^{90}\text{Sr}$  contenida en el bidón, estimada con el índice  $\beta$  total e ISOCS, con el índice  $\beta$  total y  $E\gamma$  de laboratorio y la determinada mediante centelleo líquido.

$^{90}\text{Sr}$ (Índice $\beta$ total-ISOCS) (a) Bq	$^{90}\text{Sr}$ (Índice $\beta$ total- $E\gamma$ ) (b) Bq	$^{90}\text{Sr}$ (Centelleo líquido) (c) Bq
2,60E+04 $\pm$ 5,0E+03	2,5E+04 $\pm$ 5,0E+03	1,8E+04 $\pm$ 3,0E+03

Las incertidumbres están expresadas para un factor de cobertura  $k = 2$ .

Los resultados obtenidos para la actividad del  $^{90}\text{Sr}$  con los tres métodos son estadísticamente comparables, solapando para un factor de cobertura de  $k = 2$ . Los resultados de la actividad del  $^{137}\text{Cs}$  y  $^{40}\text{K}$  determinados mediante espectrometría  $\gamma$  *in situ* y en laboratorio tienen una diferencia relativa del 4 % por lo que se pueden considerar muy satisfactorios. Existe una diferencia relativa del 31 % entre el valor de actividad del  $^{90}\text{Sr}$  determinado con los métodos a y b respecto del c, ya que las incertidumbres en la estimación del  $^{90}\text{Sr}$  determinado con los métodos a y b son elevadas. Sin embargo, se considera que el objetivo del método propuesto se alcanza satisfactoriamente ya que permite decidir si el material es desclasificable o no.

#### 4.6.4 Conclusiones parciales

- La metodología propuesta para la caracterización de materiales residuales mediante la utilización de la técnica de espectrometría  $\gamma$  *in situ* con ISOCS y mediante el contador proporcional de flujo continuo MPC-9604, es válida para su utilización en el proceso de caracterización de materiales residuales generados en la zona de "La Lenteja" perteneciente al Proyecto PIMIC-R. Siendo los resultados obtenidos para la concentración de actividad del  $^{90}\text{Sr}$ , coherentes con los obtenidos mediante la técnica de centelleo líquido.
- La caracterización de materiales residuales generados en los trabajos realizados en la Parcela J dentro del Proyecto PIMIC-R mediante la metodología expuesta, permite la toma de decisiones en lo que respecta a la gestión final de dichos materiales.
- La metodología propuesta es una metodología sencilla, económica y operativamente más interesante que las técnicas tradicionales de toma de muestras y realización de ensayos radioquímicos largos y económicamente costosos.



## **4.7 Impacto económico en la gestión de materiales residuales**

Los trabajos del Proyecto PIMIC realizados en la zona de la Lenteja, han generado 3.360 tn de materiales residuales y de acuerdo con la filosofía inicial del Proyecto PIMIC, todos los materiales residuales generados se habrían gestionado como RBMA, en cuyo caso se aplicaría el Plan de Gestión de Residuos Radiactivos del CIEMAT y su retirada por ENRESA como gestor autorizado de residuos radiactivos, para su almacenamiento posterior en El Cabril.

La segregación de los materiales residuales por sus características químico-físicas y radiológicas, originará la obtención de residuos radiactivos de baja y media actividad (RBMA), residuos radiactivos de muy baja actividad (RBBA) y residuos convencionales de construcción y demolición (RCD).

La realización posterior de una caracterización radiológica de estos materiales residuales posibilita su clasificación en función de su actividad residual, lo que permitirá que una parte elevada de estos materiales residuales sea susceptible de ser gestionada directamente como residuos convencionales sin necesidad de un control radiológico posterior, mediante un proceso denominado desclasificación.

La optimización en la producción de materiales residuales, así como la minimización en la producción de residuos radiactivos, son factores de gran relevancia debido a sus importantes repercusiones económicas, sociales y medioambientales. Por ejemplo, el almacén de RBMA y RBBA de España (El Cabril) tiene una capacidad limitada tanto por el volumen total de residuos como por su inventario total, por lo que es primordial una gestión integral de todos los materiales, al objeto de minimizar tanto el volumen de residuos como la actividad total, de manera que no se produzca una saturación de dicho almacén. Es por ello que resulta de gran importancia el realizar una segregación inicial adecuada, que permita su caracterización y gestión como residuos radiactivos (RR) sólo de aquellos materiales que superen los niveles de desclasificación. El paso siguiente será la determinación de su actividad para su clasificación como RBBA o RBMA y su remisión a El Cabril.

La caracterización previa de los materiales utilizando la metodología propuesta en este trabajo de investigación, no sólo supone un ahorro y optimización de los recursos de gestión de RR de España (punto de vista social y medioambiental), sino que además, la gestión de los materiales clasificados como RBMA, RBBA o RCD produce un importante ahorro económico en el proyecto; es decir, si se tienen en cuenta las tasas asociadas con la gestión de los residuos generados (Tabla XLII), se observa claramente que existe una diferencia notoria entre los costes asociados a cada tipo de residuo generado. Si se comparan los precios asociados con cada una de las gestiones, se constata que en el caso de los RCD el coste de su gestión es tres órdenes de magnitud inferior al de los RR. Este coste de gestión está asociado tanto con la peligrosidad medioambiental del residuo generado, como con el número y proximidad de posibles emplazamientos existentes para su gestión.

Tabla XLII. Tasas medioambientales y costes asociados a la gestión de RR y de RCD (año 2015).

Tipo de residuo	Coste, €/kg	Gestión
Sólidos urbanos (RSU) y reciclables en exteriores: papel, cartón, vidrio, envases	0	Ayuntamiento de Madrid
Papel y cartón en interiores	≈ 0,1	Gestor autorizado
Residuos de Construcción y demolición (RCD): escombros, maderas y metales	≈ 0,01	Gestores autorizados
Residuos peligrosos incluyendo clínicos, biológicos e higiénicos	≈ 3	Gestores autorizados
Residuos de aparatos eléctricos y electrónicos, incluyendo luminarias	≈ 0,4	Gestores autorizados
Residuos Radiactivos	≈ 10	ENRESA

En el caso del proyecto PIMIC del CIEMAT, la realización de un proceso de desclasificación de materiales supone un importante ahorro para el erario público. A continuación se presenta una estimación de costes de una de las actuaciones realizadas en el proyecto y del impacto económico que tiene una correcta gestión de estos materiales.

Durante la actuación de limpieza desarrollada por el proyecto PIMIC en el área de “La Lenteja” se generaron un total de 3.360 tn (<> 3360000 kg). El desglose de los materiales residuales generados en los trabajos de PIMIC realizados en dicha zona es el siguiente (Figura 74):

- Metálicos: 1 tn de desclasificables.
- Hormigón: 42 tn de desclasificables, 44 tn de RBBA y 1 tn de RBMA.
- Suelos: 1878 tn de desclasificables, 961 tn de RBBA y 7 tn de RBMA.
- Otros: 112 tn de desclasificables, 312 tn de RBBA y 2 tn de RBMA.

Como se puede observar en la Figura 75, se han generado 2.033 tn de materiales desclasificables (60,5 %), 1.317 tn de RBBA (39,2 %) y 10 tn de RBMA (0,3 %). Los materiales desclasificables mediante un proceso administrativo denominado desclasificación, pueden ser gestionados como materiales convencionales de construcción y demolición (RCD) y metálicos. Los materiales gestionados como residuos de construcción y demolición no necesitan un seguimiento radiológico, pero si el conocimiento, registro y archivo de su almacén final.

Teniendo en cuenta los valores obtenidos del proceso de clasificación de materiales (Figura 75), junto con el coste asociado a la gestión de los mismos (Tabla XLII), se puede realizar un balance comparativo del coste final de la gestión de los materiales. En la Tabla XLIII se muestra a modo de resumen el ahorro económico que supone la gestión clasificada de estos materiales.

Como se puede observar en la Tabla XLIII, la gestión propuesta en este trabajo de investigación supone un ahorro de ≈ 60 % en los costes asociados a la gestión de los materiales residuales. Este ahorro está relacionado con la gestión óptima del 60 % de los materiales RCD generados.

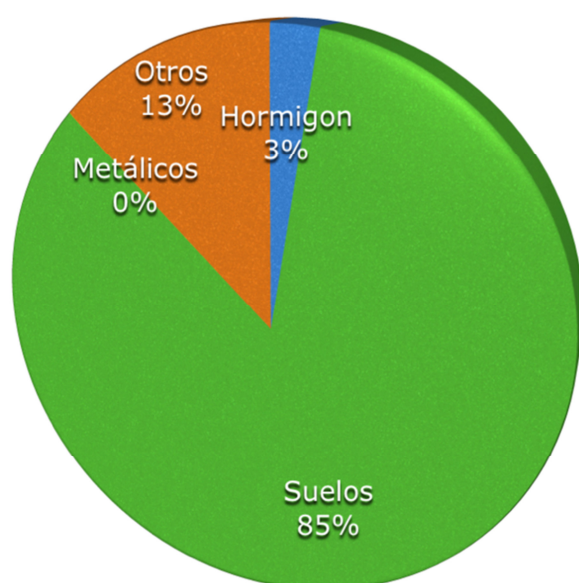


Figura 74. Materiales residuales generados por el PIMIC en el área de La "Lenteja", CIEMAT.

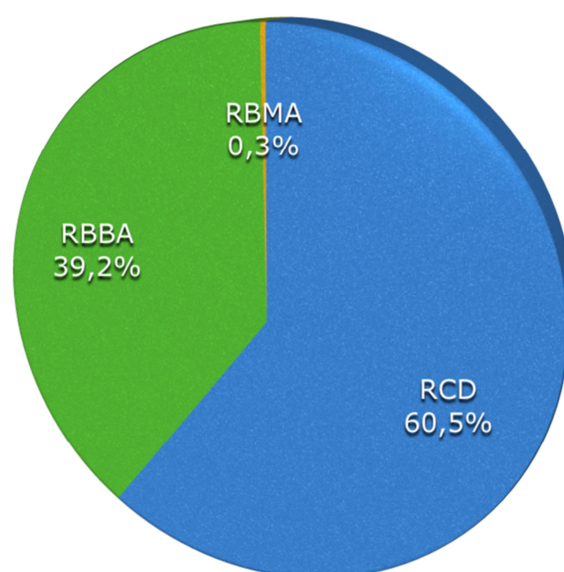


Figura 75. Clasificación de los materiales residuales generados por el PIMIC en el área de "La Lenteja" (Figura 74).

Tabla XLIII. Relación de costes económicos en base a la separación de materiales residuales realizada.

Tipo de Material	sin clasificación	Clasificación de Materiales
RR	33,60 M €	13,27 M €
RCD	0 €	20,33 k €
Total Coste	33,60 M €	13,29 M €

Por último, pero no menos importante de resaltar, es que este modelo de gestión de materiales lleva implícito beneficios sociales y medioambientales, que si bien no son cuantificables en términos económicos (es decir, €) si son de gran relevancia en nuestra sociedad.

La metodología planteada en este trabajo es aplicable no sólo a esta zona específica del CIEMAT, si no que se podría aplicar en cualquier área en la que sea necesario realizar una gestión adecuada de los residuos tanto desde punto de vista económico, como medioambiental o social.

## 5 Conclusiones

---

Como ha quedado demostrado en los apartados anteriores se han alcanzado todos los objetivos iniciales con los que se planteó este estudio.

Se ha desarrollado una metodología de caracterización radiológica y ha sido aplicada en la caracterización de los materiales residuales generados en las actividades de descontaminación del Proyecto PIMIC-Rehabilitación. Las técnicas utilizadas han sido:

- Espectrometría  $\gamma$  *in situ* realizando la calibración en eficiencias con ISOCS, aplicada a una geometría tipo bidón.
- Recuento mediante un contador proporcional de flujo continuo de bajo fondo radiactivo, marca Protean, modelo MPC-9604, mediante el cual se han determinado los índices de actividad  $\alpha$  y  $\beta$  total.

Como principales conclusiones científicas de este trabajo destacar las siguientes:

1. La puesta a punto del contador proporcional marca Protean, modelo MPC-9604 ha supuesto:
  - a. La determinación del potencial óptimo de trabajo de los detectores del contador proporcional MPC-9604 en 1485 V.
  - b. La determinación del índice de actividad  $\beta$  total requiere de una corrección debida al *spillover* que se produce en la ventana  $\beta$ , mientras que en el caso de la ventana  $\alpha$  no es necesaria dicha corrección.
  - c. Las AMD's obtenidas para un tiempo de medida de 4320 min, permiten alcanzar unos límites de detección inferiores a  $0,05 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$  para emisores  $\alpha$  y  $0,5 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$  para emisores  $\beta$ , que se corresponden con el 50 % de los niveles de desclasificación de los radionucleidos más restrictivos,  $^{239+0}\text{Pu}$  y  $^{90}\text{Sr}$ .
  - d. La utilización de la técnica del contador proporcional para la determinación de los índices de actividad  $\alpha$  y  $\beta$  total, es adecuada para la caracterización de materiales residuales con el objeto de proceder a su desclasificación.
  - e. La técnica del contador proporcional es adecuada para la determinación de los índices de actividad  $\alpha$  y  $\beta$  total y la caracterización de materiales desclasificables del Proyecto PIMIC. Los límites de detección de esta técnica son inferiores al 50 % de los niveles de desclasificación de los radionucleidos más restrictivos. Además, los resultados obtenidos para el índice de actividad  $\beta$  total siguen el comportamiento de una distribución normal, por tanto, dicho índice puede utilizarse para la determinación de la actividad del  $^{90}\text{Sr}$ , radionucleido presente en los materiales que se han utilizado para la realización de este trabajo de investigación, generados en la rehabilitación de la zona de "La Lenteja".

2. Las condiciones óptimas de caracterización de un bulto por espectrometría  $\gamma$  *in situ* con ISOCS se ven influenciadas por la actividad que presenta el bulto, que va a determinar el colimador, blindaje y distancia a la que se realicen los ensayos.
  - a. De forma general para todo tipo de bultos:
    - ✓ Existe una dependencia de la eficiencia del detector de Ge con la composición de la matriz del bulto principalmente a bajas energías, donde la interacción de la radiación con la materia es debida fundamentalmente al efecto fotoeléctrico, siendo el Fe y el Ca los elementos más influyentes en la pérdida de eficiencia del detector a energías inferiores a 200 keV, ya que tienen un coeficiente de atenuación másico mayor que el resto de los elementos estudiados debido a su mayor número atómico Z.
    - ✓ La eficiencia obtenida mediante ISOCS para los distintos tipos de cementos Portland estudiados es independiente de la composición de los mismos dentro de las incertidumbres del cálculo.
    - ✓ La autoabsorción de la radiación  $\gamma$  depende fuertemente de la densidad del material estudiado, siendo más marcada la influencia de la densidad sobre la eficiencia a energías bajas y medias, debido al proceso de atenuación que tiene lugar por la interacción del efecto fotoeléctrico, efecto Compton y de la formación de pares.
  - b. Para bultos con residuos de baja y mediana actividad (RBMA):
    - ✓ Se utilizará colimador de 30 °.
    - ✓ Blindaje de Pb de 50 mm de espesor.
    - ✓ La distancia bulto-detector óptima de trabajo en 3 m, realizando la medida integral de bulto completo.
    - ✓ El efecto de la atenuación de la radiación por interposición de un absorbente se produce fundamentalmente para las energías más bajas.
  - c. Para bultos con materiales desclasificables:
    - ✓ Se utilizará colimador de 90 °.
    - ✓ Blindaje de Pb de 50 mm de espesor.
    - ✓ La distancia bulto-detector óptima de trabajo en 50 cm, realizando la medida integral del bulto completo.
3. La caracterización de bultos con materiales residuales mediante espectrometría  $\gamma$  *in situ* con ISOCS se realizará teniendo en cuenta la homogeneidad del material residual así como su densidad.
4. La técnica de espectrometría  $\gamma$  *in situ* con calibración en eficiencias mediante ISOCS aplicada a la medida de bultos homogéneos con movimiento de rotación uniforme es una técnica adecuada para la caracterización de materiales desclasificables por su sensibilidad, ya que cumple con el requisito que la AMD sea menor que el 50 % de los niveles de desclasificación, así como por la optimización en los tiempos de medida y la versatilidad en cuanto al lugar de utilización.

5. La determinación de la actividad de un bulto con materiales residuales homogéneos se realizará utilizando la eficiencia determinada con el tratamiento HOMOG, indistintamente de la densidad y con rotación uniforme del bulto.
6. Los valores de actividad obtenidos en la validación interna de bultos homogéneos fueron satisfactorios tanto para los ensayos realizados en estático como los realizados con rotación uniforme del bulto. Por tanto, la caracterización de bultos homogéneos se puede realizar tanto en estático como dinámico, aunque se recomienda en dinámico por sus ventajas.
7. La determinación de la actividad de un bulto conteniendo materiales residuales con densidades bajas ( $\rho < 1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) y cuya distribución de actividad sea desconocida (bulto heterogéneo), se realizará utilizando la eficiencia determinada con el tratamiento HOMOG.
8. La determinación de actividad en bultos con materiales residuales con distribución de actividad heterogénea y desconocida, cuyas densidades sean superiores a  $1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ , se realizará utilizando la metodología heterogénea, mediante la eficiencia media ponderada intermedia (EMPY). En estos casos, la actividad determinada presenta una incertidumbre elevada debido al desconocimiento que se tiene de la distribución de la actividad en el bidón.
9. La determinación de la actividad en bultos con materiales residuales que presenten una distribución de actividad heterogénea pero conocida se realizará haciendo uso de la eficiencia promedio ponderada (EPP).
10. La metodología propuesta para la caracterización de materiales residuales, mediante la utilización de la técnica de espectrometría  $\gamma$  *in situ* con ISOCS y mediante el contador proporcional de flujo continuo MPC-9604, es válida para su utilización en el proceso de caracterización de materiales residuales generados en la zona de "La Lenteja" perteneciente al Proyecto PIMIC-R.
11. La exactitud y precisión que presenta esta metodología la hacen válida para su utilización en los procesos de desclasificación de materiales al cumplir con los requisitos de que las AMD's obtenidas sean inferiores al 50 % de los niveles de desclasificación.
12. La metodología propuesta es una metodología sencilla, económica y operativamente más interesante que las técnicas tradicionales de toma de muestras y realización de ensayos radioquímicos largos y económicamente costosos.
13. La determinación del  $^{90}\text{Sr}$  mediante la metodología propuesta evita la necesidad de realizar análisis de separación radioquímica del  $^{90}\text{Sr}$  (análisis complejos, largos y costosos), al quedar demostrado que los resultados obtenidos son coherentes con los determinados mediante la técnica de centelleo líquido.
14. La caracterización de materiales residuales generados en los trabajos realizados en el Proyecto PIMIC-R mediante la metodología propuesta, permite la toma de decisiones en lo que respecta a la gestión final de dichos materiales, que producen importantes beneficios desde el punto de vista económico, medioambiental y social.



## 6 Líneas futuras de investigación

---

La metodología planteada en este trabajo es una metodología aplicada a una zona determinada del CIEMAT, con unas características radiológicas específicas y para una geometría de bulto tipo bidón.

La elección de la geometría tipo bidón se realizó porque inicialmente el enfoque del trabajo estaba dirigido a la caracterización de residuos radiactivos.

En general, la gran mayoría de los materiales residuales generados en el Proyecto PIMIC son materiales desclasificables, siendo por tanto necesaria la utilización de otro tipo de contenedores de mayor capacidad como son CMB y CMD para el almacenamiento de este tipo de materiales. Por tanto, sería interesante la extrapolación de la metodología aquí presentada a estas geometrías de mayor capacidad.

Por otra parte, las diferentes obras acometidas por el Proyecto PIMIC suponen la existencia de características radiológicas específicas para cada una de ellas. Por tanto la metodología planteada debe ir acorde con las características radiológicas que presente la zona concreta.

También sería interesante la realización de estudios con el contador proporcional y con la técnica de espectrometría  $\gamma$  *in situ* con ISOCS, para ver la influencia de las series naturales en la determinación de actividades.

Otro tipo de estudio atractivo de acometer sería la localización de los puntos calientes en los bultos haciendo uso de diferentes técnicas de medida y mediante el desarrollo de algoritmos matemáticos.





## 7 Referencias

---

- [1] "Plan de Gestión de Residuos Radiactivos del CIEMAT. PT-SM-01," 2009.
- [2] "Criterios de aceptación de bultos RBBA. Especificación ENRESA 031-ES-IN-0015," 2011.
- [3] "Criterios de aceptación de bultos RBMA. Especificación ENRESA 031-ES-IN-0011," 2010.
- [4] C. Industries, "Model S573 ISOCS Calibration Software for Genie-2000: User's Manual," C. Industries, Ed., 1999.
- [5] "Real Decreto 102/2014, de 21 de febrero, para la gestión responsable y segura del combustible nuclear gastado y los residuos radiactivos," «BOE» núm. 58, de 8 de marzo de 2014, páginas 22069 a 22082 (14 págs.), 2014.
- [6] "Instrucción IS-31, de 26 de julio de 2011, del Consejo de Seguridad Nuclear, sobre los criterios para el control radiológico de los materiales residuales generados en las instalaciones nucleares," «BOE» núm. 224, de 17 de septiembre de 2011, páginas 99116 a 99121 (6 págs.), 2011.
- [7] "RP 122 "Practical Use of the Concepts of Clearance and Exemption-Part I, Guidance on General Clearance Levels for Practises", E. Commission, Ed., 2000.
- [8] "ORDEN ECO/1449/2003, de 21 de mayo, sobre gestión de materiales residuales sólidos con contenido radiactivo generados en las instalaciones radiactivas de 2.ª y 3.ª categoría en las que se manipulen o almacenen isótopos radiactivos no encapsulados," «BOE» núm. 134, de 5 de junio de 2003, páginas 21840 a 21842 (3 págs.), 2003.
- [9] IAEA, "Determination and use of scaling factors for waste characterization in nuclear power plants," 2009.
- [10] "Metodología de cálculo de factores de escala en procesos de desmantelamiento de instalaciones. ENRESA, Informe 031-IF-IN-0259," 2007.
- [11] "Enmiendas propuestas por Portugal a los Anejos A y B, enmendados, del Acuerdo Europeo sobre transporte internacional de mercancías peligrosas por carretera (ADR), hecho en Ginebra el 30 de septiembre de 1957, aprobadas por el Grupo de Trabajo para el Transporte de Mercancías Peligrosas de la Comisión Económica para Europa durante las sesiones 88ª, 89ª, 91ª y 92ª." «BOE» núm. 63, de 14 de marzo de 2013, páginas 19648 a 20685 (1038 págs.), 2013.
- [12] "Enmiendas de 2010 al Código Marítimo Internacional de Mercancías Peligrosas (CÓDIGO IMDG), adoptadas en Londres el 21 de mayo de 2010 mediante la Resolución MSC.294(87)." «BOE» núm. 191, de 10 de agosto de 2013, páginas 58635 a 58725 (91 págs.), 2013.
- [13] "Enmiendas al Reglamento relativo al Transporte Internacional de Mercancías Peligrosas por ferrocarril (RID 2013), Anejo al Convenio relativo a los Transportes

- Internacionales por Ferrocarril (COTIF), hecho en Berna el 9 de mayo de 1980, adoptadas por la Comisión de expertos para el transporte de mercancías peligrosas en su 50ª sesión celebrada en Malmo del 21 al 25 de noviembre de 2011 y en su 51ª sesión celebrada en Berna del 30 al 31 de mayo de 2012.," «BOE» núm. 91, de 16 de abril de 2013, páginas 28026 a 28951 (926 págs.), 2013.
- [14] "Orden FOM/3553/2011, de 5 de diciembre, por la que se modifica el Anexo 2 del Real Decreto 1749/1984, de 1 de agosto, por el que se aprueban el Reglamento Nacional sobre el transporte sin riesgos de mercancías peligrosas por vía aérea y las Instrucciones Técnicas para el transporte sin riesgos de mercancías peligrosas por vía aérea, para actualizar las Instrucciones Técnicas.," «BOE» núm. 313, de 29 de diciembre de 2011, páginas 144693 a 145575 (883 págs.), 2011.
- [15] "Ley 25/1964, de 29 de abril, sobre energía nuclear.," «BOE» núm. 107, de 4 de mayo de 1964, páginas 5688 a 5696 (9 págs.), 1964.
- [16] "Ley 15/1980, de 22 de abril, de creación del Consejo de Seguridad Nuclear. Modificada por Ley 33/2007 de reforma de la Ley de creación del CSN.," «BOE» núm. 100, de 25 de abril de 1980, páginas 8967 a 8971 (5 págs.), 1980.
- [17] "Directiva 96/29/Euratom del Consejo de 13 de mayo de 1996 por la que se establecen las normas básicas relativas a la protección sanitaria de los trabajadores y de la población contra los riesgos que resultan de las radiaciones ionizantes," Diario Oficial nº L 159 de 29/06/1996 p. 0001 - 0114, 1996.
- [18] "R.D. 1836/1999, de 3 de diciembre, por el que se aprueba el Reglamento sobre instalaciones nucleares y radiactivas. Modificado por R.D. 35/2008, de 18 de enero.," «BOE» núm. 313, de 31 de diciembre de 1999, páginas 46463 a 46482 (20 págs.), 1999.
- [19] "Sexto Plan General de Residuos Radiactivos," Ministerio de Industria Turismo y Comercio, 2006.
- [20] "Resolución de 14 de febrero de 2006, de la Dirección General de Política Energética y Minas, por la que se autoriza a ENRESA la ejecución y montaje de las celdas de almacenamiento de residuos de muy baja actividad en la instalación nuclear de almacenamiento de residuos radiactivos sólidos de Sierra Albarrana (El Cabril).," «BOE» núm. 62, de 14 de marzo de 2006, páginas 10315 a 10320 (6 págs.), 2006.
- [21] "Orden de 31 de octubre de 1989 por la que se otorga a la «Empresa Nacional de Residuos Radioactivos, Sociedad Anónima», autorización para la construcción de la ampliación de la Instalación Nuclear de Almacenamiento de Residuos Radiactivos Sólidos de Sierra Albarrana.," «BOE» núm. 263, de 2 de noviembre de 1989, páginas 34448 a 34457 (10 págs.), 1989.
- [22] G. F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*. New York: John Willey and Sons, 2000.
- [23] N. Tsoulfanidis, *Measurement and Detection of Radiation*. Washington, 1995.
- [24] G. D. Alkhazov, A. P. Komar, and A. A. Vorob'ev, "Ionization fluctuations and resolution of ionization chambers and semiconductor detectors," *Nuclear Instruments and Methods*, vol. 48, pp. 1-12, 1967.
- [25] S. O. Troja, Cro, A., Picouet, P., "Alpha and beta dose-rate determination using a gas proportional counter. ," *Radiation Measurements*, vol. 24, pp. 297-308, 1995.

- [26] M. García-León, M. I. Gallardo, E. García-Montaño, and G. Madurga, "Medida simultánea de la actividad alfa y beta (II): análisis del rendimiento y aplicación a muestras de agua de río," *Anales de física, Serie B*, vol. 80, pp. 1-15, 1984a.
- [27] L. Pujol, Suárez-Navarro, J. A., Díaz, M. F., "Estudio comparativo de los modos de medida secuencial y simultáneo con el contador proporcional LB 770-2," *En XXV Reunión Anual de la Sociedad Nuclear Española. Madrid: Senda Editorial*, 1999.
- [28] J. A. Suárez-Navarro, Pujol, L., *Índice de Actividad Beta Total: Curvas de Autoabsorción.*, 2002.
- [29] S. Pérez and A. Plata, *Interacción de la radiación con la materia: partículas alfa y beta*. Madrid: Artes Gráficas Langa y Compañía, 1965.
- [30] A. H. W. Aten, "Corrections for beta-particle self-absorption," *Nucleonics*, vol. 6, pp. 14-19, 1950.
- [31] G. K. Schweitzer and B. R. Stein, "Measuring solid samples of low-energy beta emitters.," *Nucleonics*, vol. 7, pp. 65-72, 1950.
- [32] G. D. Chase and J. L. Rabinowitz, *Principles of radioisotope methodology*. Minneapolis, 1967.
- [33] CETAMA, *Mesures d'activité nucléaire*. Paris, 1973.
- [34] G. Friedlander, J. W. Kennedy, E. S. Macías, and J. M. Miller, *Interaction of Ratiations with matter*. New York: John Willey & Sons, 1981.
- [35] H. W. Jeter, "An extended-range method for gross alpha/beta-particle measurements in water samples," *Radioactivity&Radiochemistry*, vol. 9, pp. 16-25, 1998.
- [36] G. Gilmore, *Practical Gamma-ray Spectrometry*. Warrington, UK: John Willey and Sons, 2008.
- [37] J. A. Suárez-Navarro, "Investigación de procedimientos radioquímicos para la determinación de los principales emisores alfa en aguas para su implementación en una red de vigilancia radiológica ambiental," in *Química Analítica y Análisis Instrumental* Madrid: UAM, 2009.
- [38] M. Toma, O. Sima, and C. Olteanu, "Experimental and simulated studies for the calibration of a radioactive waste assay system," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 580, pp. 391-395, 2007.
- [39] O. Sima and C. Dovlete, "Matrix Effects in the Activity Measurement of Environmental Samples-Implementation of Specific Corrections in a Gamma-ray Spectrometry Analysis Program," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 48, pp. 59-69, 1997.
- [40] O. Sima and D. Arnold, "Accurate computation of coincidence summing corrections in low level gamma-ray spectrometry," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 53, pp. 51-56, 2000.
- [41] O. Sima and D. Arnold, "Transfer of the efficiency calibration of Germanium gamma-ray detectors using the GESPECOR software," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 56, pp. 71-75, 2002.

- [42] O. Sima, I. L. Cazan, L. Dinescu, and D. Arnold, "Efficiency calibration of high volume samples using the GESPECOR software," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 61, pp. 123-127, 2004.
- [43] L. Dinescu, I. Vata, I. L. Cazan, R. Macrin, G. Carageorgheopol, and G. Rotarescu, "On the efficiency calibration of a drum waste assay system," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 487, pp. 661-666, 2002.
- [44] R. A. Forster, L. J. Cox, R. F. Barrett, T. E. Booth, J. F. Briesmeister, F. B. Brown, J. S. Bull, G. C. Geisler, J. T. Goorley, R. D. Mosteller, S. E. Post, R. E. Prael, E. C. Selcow, and A. Sood, "MCNP-Versión 5," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 213, pp. 82-86, 2004.
- [45] F. Tzika, D. Kontogeorgakos, T. Vasilopoulou, and I. E. Stamatelatos, "Application of the Monte Carlo method for the calibration of an in situ gamma spectrometer," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 68, pp. 1441-1444, 2010.
- [46] J. Ródenas, A. Martinavarro, and V. Rius, "Validation of the MCNP code for the simulation of Ge-detector calibration," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 450, pp. 88-97, 2000.
- [47] T. Vidmar, I. Aubineau-Laniece, M. J. Anagnostakis, D. Arnold, R. Brettner-Messler, D. Budjas, M. Capogni, M. S. Dias, L. E. De Geer, A. Fazio, J. Gasparro, M. Hult, S. Hurtado, M. Jurado Vargas, M. Laubenstein, K. B. Lee, Y. K. Lee, M. C. Lepy, F. J. Maringer, V. Medina Peyres, M. Mille, M. Morales, S. Nour, R. Plenteda, M. P. Rubio Montero, O. Sima, C. Tomei, and G. Vidmar, "An intercomparison of Monte Carlo codes used in gamma-ray spectrometry," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 66, pp. 764-768, 2008/7// 2008.
- [48] A. Álvarez García, J. C. Saez Vergara, and L. Martín Iniesta, "Plan de Control de Materiales Desclasificables Procedentes del Proyecto PIMIC-Rehabilitación. CIEMAT, PT-PCMD," 2014.
- [49] "Procedimiento de asignación isotópica y clasificación inicial de tierras procedentes de los alrededores de la celda F1 del Proyecto PIMIC-Desmantelamiento. ENRESA 057-PC-PI-0125," 2012.
- [50] M. J. Marijuán, I. Dutrús, and J. Torre, "Procedimiento para la clasificación inicial y gestión de los materiales en las actuaciones PIMIC-Rehabilitación. CIEMAT, PT-PIMIC-PDC-03," 2014.
- [51] N. Navarro, L. Yagüe, and P. Pérez-Cejuela, "Criterios radiológicos para la clasificación inicial de los materiales PIMIC-Rehabilitación del CIEMAT, PT-PR-36," 2012.
- [52] "Criterios de aceptación de bultos primarios. ENRESA, 031-ES-IN-0011. REV.4," 2012.
- [53] L. Done, L. C. Tugulan, F. Dragolici, and C. Alexandru, "Gamma-ray spectrometry method used for radioactive waste drums characterization for final disposal at National Repository for Low and Intermediate Radioactive Waste - Baita, Romania," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 87, pp. 380-383, 2014.

- [54] D. Stanga and D. Gurau, "A new approach in gamma-ray scanning of rotating drums containing radioactive waste," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 70, pp. 2149-2153, 2012.
- [55] D. Stanga, D. Radu, and O. Sima, "A new model calculation of the peak efficiency for HPGe detectors used in assays of radioactive waste drums," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 68, pp. 1418-1422, 2010.
- [56] D. Gurau and O. Sima, "Simulation studies of the response function of a radioactive waste assay system," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 70, pp. 305-308, 2012.
- [57] D. Gurau and O. Sima, "The examination of source distribution in a large sample by Monte Carlo simulation," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 70, pp. 2141-2143, 2012.
- [58] M. Toma, C. Cristache, L. Done, F. Dragolici, and O. Sima, "Characterization studies of radioactive waste drums using high resolution gamma spectrometric systems." vol. 1203, 2010, pp. 35-39.
- [59] Chun-Liang Chenn, Jeng-Jong Wang, and H.-S. Chiu, "Proficiency testing criteria for clearance level in solid waste gamma measurement in Taiwan," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 81, pp. 32-35, 2013.
- [60] M.-C. Yuan, C.-H. Yeh, J.-J. Wang, I.-J. Chen, and C.-F. Wang, "The calibration and evaluation of a radioactive waste drum counting system," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 67, pp. 931-934, 2009.
- [61] P.-J. Huang, H.-S. Chiu, C.-H. Yeh, J.-J. Wang, and M.-C. Yuan, "The performance evaluation of a movable gamma-ray counting system for radwaste measurement," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 70, pp. 1977-1980, 2012.
- [62] C.-H. Yeh, M.-C. Yuan, and B.-J. Chang, "Proficiency test for clearance mixed-nuclide samples," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 70, pp. 1856-1859, 2012.
- [63] H.-J. Wei, T.-L. Tsai, J.-J. Wang, I.-J. Chen, J.-L. Wu, and T.-W. Wang, "Clearance measurement of metal scraps for nuclear facility at INER in Taiwan," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 67, pp. 944-949, 2009.
- [64] R. Carchon, M. Bruggeman, and I. Majkowski, "Non-destructive assay methods for the free release of dismantling wastes," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 53, pp. 317-322, 2000.
- [65] M. Klein and S. Moers, "The free release of dismantled materials: The practical case of the BR3 reactor," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 53, pp. 323-329, 2000.
- [66] R. Carchon, M. Moeslinger, L. Bourva, C. Bass, and M. Zendel, "Gamma radiation detectors for safeguards applications," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 579, pp. 380-383, 2007.
- [67] J. Dean, "A UK comparison for measurements of low levels of gamma-emitters in waste drums," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 67, pp. 678-682, 2009.
- [68] G. Piña Lucas and al., "ISO 14850-2 Standard guide for gamma-ray spectrometric measurements of radioactive waste."

- [69] G. Piña Lucas, "Caracterización radiológica de radionucleidos emisores gamma en bultos conteniendo residuos radiactivos de actividad baja o media mediante espectrometría gamma de alta resolución," Universidad Autónoma de Madrid, 1999.
- [70] C. W. Bjork, "Proceedings of the Third International Conference on Facility Operation Safeguards Interface ", San Diego, CA. 1987.
- [71] J. K. Sprinkle and S. T. Hsue, "Proceedings of the Third International Conference on Facility Operation Safeguards Interface," San Diego, CA. 1987.
- [72] A. Cesana, M. Terrani, and G. Sandrelli, "Gamma activity determination in waste drums from nuclear plants," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 44, pp. 517-520, 1993.
- [73] B. M. Gillespie, "Detection a correction of inhomogeneities in drum waste assay systems," *Waste Management*, 1994.
- [74] F. Levai, Z. Nagy, and T. Dung, "Low resolution combined emission-transmission imaging techniques for matrix characterization and assay of waste, Proc. of 17 th ESARDA. An. Symp. Aachen," 1995.
- [75] T. Q. Dung, "New measuring technique for assay of radioactive materials in waste drums," *Progress in Nuclear Energy*, vol. 33, pp. 403-420, 1998.
- [76] T. Q. Dung, "Some theoretical results of gamma techniques for measuring large samples," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 416, pp. 505-515, 1998.
- [77] Y. F. Bai, E. Mauerhofer, D. Z. Wang, and R. Odoj, "An improved method for the non-destructive characterization of radioactive waste by gamma scanning," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 67, pp. 1897-1903, 2009.
- [78] T. H. Anh and T. Q. Dung, "Evaluation of performance of gamma tomographic technique for correcting lump effect in radioactive waste assay," *Annals of Nuclear Energy*, vol. 28, pp. 265-273, 2001.
- [79] T. Q. Dung, "Modification to technique using two detectors for assay of radioactive waste drum," *Annals of Nuclear Energy*, vol. 24, pp. 645-657, 1997.
- [80] S. Croft, R. Venkataraman, and M. Villani, "Characterizing a tomographic gamma scanner," *Proceedings of 45th Annual INMM Meeting*, 2004.
- [81] R. Venkataraman, S. Croft, M. Villani, and R. J. Estep, "Performance study of the tomographic gamma scanner for the radioassay of drums," *Proceedings of 45th Annual INMM Meeting*, 2004.
- [82] R. Venkataraman, M. Villani, S. Croft, P. McClay, R. McElroy, S. Kane, W. Mueller, and R. Estep, "An integrated Tomographic Gamma Scanning system for non-destructive assay of radioactive waste," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 579, pp. 375-379, 2007.
- [83] "Protean Instruments. Application Note AN-0807-1 P10-Gas Flow Considerations with Multi-Detector Systems," 2012.

- [84] M. J. Marijuán, "Puesta a punto del contador proporcional MPC-9604 para la caracterización de residuos radiactivos," in *Trabajo Fin de Máster de Ciencia y Tecnologías Químicas*: UCM, 2012.
- [85] J. F. Briesmeister, "MNCP-a general purpose Monte Carlo N-particle transport code, Version 4A," *Los Alamos National Laboratory Report*, 1993.
- [86] F. Bronson and L. Wang, "Proc. Waste Management," 1996.
- [87] R. G. Helmer, J. C. Hardy, V. E. Jacob, M. Sanchez-Vega, R. G. Neilson, and J. Nelson, "The use of Monte Carlo calculations in the determination of a Ge detector efficiency curve," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 511, pp. 360-381, 2003.
- [88] C. Industries, "Geometry Composer User's Manual," 2009.
- [89] R. Venkataraman, F. Bronson, V. Abashkevich, B. M. Young, and M. Field, "Validation of in situ object counting system (ISOCS) mathematical efficiency calibration software," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 422, pp. 450-454, 1999.
- [90] P. Kalb, "Comparability of ISOCS instrument in radionuclide characterization at Brookhaven National Laboratory," New York. 2001.
- [91] C. Industries, "DSA 1000 Digital Spectrum Analyzer, Hardware manual," 2005.
- [92] C. Industries, "Model 1300 InSpector 2000, Hardware manual," 2001.
- [93] C. Industries, "Genie 2000 Spectrometry Software Customization Tools," 2009.
- [94] C. Industries, "Genie 2000 Spectrometry Software Operations," 2009.
- [95] M. A. Mariscotti, "A method for automatic identification of peaks in the presence of background and its application to spectrum analysis," *Nuclear Instruments and Methods*, vol. 50, pp. 309-320, 1967.
- [96] M. J. Koskelo, P. A. Aarnio, and J. T. Routti, "SAMP080: Minicomputer program for gamma spectrum analysis with nuclide identification," *Computer Physics Communications*, vol. 35, pp. C-741, 1984.
- [97] L. A. Currie, "Limits for qualitative detection and quantitative determination.," *Analytical Chemistry*, vol. 40, pp. 586-593, 1968.
- [98] P. Theodórsson, "Interaction of radiation with matter," *Measurement of Weak Radioactivity*, pp. 43-51, 1996.
- [99] ICRU, "Measurement of low-level radioactivity," *ICRU (International Commission of Radiation Units and Measurements)*, vol. Report 22, Washington, 1972.
- [100] CEM, *Guía para la expresión de la incertidumbre de medida. (Centro Español de Metrología)*. Madrid, 1998.
- [101] T. Q. Dung, "Calculation of the systematic error and correction factors in gamma waste assay system," *Annals of Nuclear Energy*, vol. 24, pp. 33-47, 1997.



- [102] M. Bruggeman, J. Gerits, and R. Carchon, "A minimum biased shell-source method for the calibration of rad waste assay systems," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 51, pp. 255-259, 1999.
- [103] B. M. Gillespie, "Proceedings of the Symposium on International Safeguards," in *Series ISSN 0074-1884*, Vienna, Austria, 1994, p. 593.
- [104] B. M. Gillespie and M. Zebarth, "Proceedings of the 14th ESARDA Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Material Management," Salamanca, Spain, 1992.
- [105] R. Davidson, M. J. Koskelo, B. M. Gillespie, R. D. McElroy, and T. Nishida, "Total measurement uncertainty for NDA for SNM, process material and waste, Technical Paper," Canberra Ind. 1999.
- [106] R. M. W. Overwater, P. Bode, and J. J. M. de Goeij, "Gamma-ray spectroscopy of voluminous sources Corrections for source geometry and self-attenuation," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 324, pp. 209-218, 1993.
- [107] R. Rieppo, "The efficiencies of different photon detectors. A review covering work done between 1975 and 1985," *International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Part A. Applied Radiation and Isotopes*, vol. 38, pp. 1-5, 1987.
- [108] M. Korun and R. Martincic, "Efficiency calibration of gamma-ray spectrometers for volume-source geometry," *International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Part A. Applied Radiation and Isotopes*, vol. 43, pp. 29-35, 1992.
- [109] T. M. Semkow, H. W. Jeter, B. Parsa, P. P. Parekh, D. K. Haines, and A. Bari, "Modeling of alpha mass-efficiency curve," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, vol. 538, pp. 790-800, 2005.
- [110] A. Martín Sánchez, G. Sáenz García, and M. Jurado Vargas, "Study of self-absorption for the determination of gross alpha and beta activities in water an soil samples," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 67, pp. 817-820, 2009.
- [111] V. Gómez Escobar, F. Vera Tomé, and A. Martín Sánchez, "Gross alpha and beta activities in rainwater and airborne particulate samples. Influence of rainfall and Radon," *Journal environmental radioactivity*, vol. 31, pp. 273-285, 1996.
- [112] L. Pujol and J. A. Suarez-Navarro, "Self-absorption correction for beta radioactivity measurements in water samples," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 60, pp. 693-702, 2004.
- [113] G. Ramis Ramos and M. C. García Álvarez-Coque, *Quimiometría*. Madrid, 2001.
- [114] A. Álvarez García, J. Quiñones Díez, and C. López Martínez, "Manual de protección radiológica del CIEMAT, MPR," 2014.
- [115] "R.D. 783/2001, de 6 de julio, por el que se aprueba el Reglamento de protección sanitaria contra radiaciones ionizantes," «BOE» núm. 178, de 26 de julio de 2001, páginas 27284 a 27393 (110 págs.), 2001.
- [116] O. Sima, "Applications of Monte Carlo calculations to gamma-spectrometric measurements of environmental samples," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 47, pp. 919-923, 1996.

- [117] J. H. Hubbell, "Photon Mass Attenuation and Energy-absorption Coefficients," *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, vol. 33, pp. 1269-1290, 1982.
- [118] C. Celiktaş, "A method to determine the gamma-ray linear attenuation coefficient," *Annals of Nuclear Energy*, vol. 38, pp. 2096-2100, 2011.
- [119] R. B. Galloway, "Correction for sample self-absorption in activity determination by gamma spectrometry," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 300, pp. 367-373, 1991.
- [120] P. G. Appleby, N. Richardson, and P. J. Nolan, "Self-absorption corrections for well-type germanium detectors," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 71, pp. 228-233, 1992.
- [121] AENOR, "Cement - Part 1: Composition, specifications and conformity criteria for common cements." vol. UNE-EN 197-1, 2011.
- [122] M. S. Al-Masri, M. Hasan, A. Al-Hamwi, Y. Amin, and A. W. Doubal, "Mass attenuation coefficients of soil and sediment samples using gamma energies from 46.5 to 1332 keV," *Journal of Environmental Radioactivity*, vol. 116, pp. 28-33, 2013.
- [123] K. S. Mann, J. Singla, V. Kumar, and G. S. Sidhu, "Investigations of mass attenuation coefficients and exposure buildup factors of some low-Z building materials," *Annals of Nuclear Energy*, vol. 43, pp. 157-166, 2012.
- [124] C. Robert-Coutant, V. Moulin, R. Sauze, P. Rizo, and J. M. Casagrande, "Estimation of the matrix attenuation in heterogeneous radioactive waste drums using dual-energy computed tomography," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 422, pp. 949-956, 1999.
- [125] T. Krings and E. Mauerhofer, "Reconstruction of the isotope activity content of heterogeneous nuclear waste drums," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 70, pp. 1100-1103, 2012.
- [126] T. Krings and E. Mauerhofer, "Reconstruction of the activity of point sources for the accurate characterization of nuclear waste drums by segmented gamma scanning," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 69, pp. 880-889, 2011.
- [127] A. Chiroasca, R. Suvaila, and O. Sima, "Monte Carlo simulation by GEANT 4 and GESPECOR of in situ gamma-ray spectrometry measurements," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 81, pp. 87-91.
- [128] B. M. Young, S. Croft, and R. D. McElroy, "The Impact of Matrix Heterogeneity on Gamma-ray Waste Assay," Canberra Industries, Inc. 2006.
- [129] B. M. Young, S. Croft, and H. Zhu, "The Influence of Source and Matrix Nonuniformity on the TMU an Bias of Large Container Gamma-Ray Assay Results," *Proceedings of 47th Annual INMM Meeting*, 2006.
- [130] M.-C. Yuan, C.-H. Yeh, C.-Y. Yeh, I.-J. Chen, and C.-F. Wang, "Proficiency testing feasibility study for the measurement of gamma-emitting clearance samples," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 68, pp. 1211-1216, 2010.

- [131] T. H. Anh, N. D. Thanh, and T. Q. Dung, "Evaluation of performance of a new gamma technique for assay of radioactive waste," *Annals of Nuclear Energy*, vol. 32, pp. 1516-1523, 2005.
- [132] "Procedimiento de asignación isotópica y clasificación inicial de tierras de la lenteja del Proyecto PIMIC-Desmantelamiento. ENRESA 057-PC-PI-0114," 2010.
- [133] J. A. Suarez-Navarro, "Plan de Vigilancia Radiológica Ambiental. Resultados de  $^{40}\text{K}$  en suelos, CIEMAT," Febrero 2015.
- [134] ENRESA, "Distribución de la radiactividad en el terreno de "LaLenteja". T-00-NUC-037."
- [135] "EPRI NP-4037 Radiative Correlations in Low-Level RadWaste. Final Report," 1985.
- [136] D. Peña y Sánchez de Rivera, *Estadística, Modelos y Métodos*. vol. 1 y 2: Alianza Editorial, 1995.
- [137] IBM, "SPSS Statistics," 20 ed.

## 8 Relación de tablas y figuras

---

### 8.1 Índice de tablas

Tabla I. Valores de la eficiencia de recuento $\alpha$ (%) en función del potencial (V).....	52
Tabla II. Valores de la eficiencia de recuento $\beta$ (%) en función del potencial (V).....	52
Tabla III. Valores de fondo $\alpha$ y $\beta$ en cuentas en función del potencial (V) para $t=1000$ min.....	53
Tabla IV. Curvas de autoabsorción. ....	57
Tabla V. Índices de actividad $\alpha$ total ( $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ ). ....	58
Tabla VI. Índices de actividad $\beta$ total ( $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ ).....	59
Tabla VII. Valores de la eficiencia de recuento $\beta$ (%) para los distintos detectores a 1485 V. ....	60
Tabla VIII. Prueba F para varianzas de dos conjuntos de muestras. ....	61
Tabla IX. Prueba t para medias de dos conjuntos de muestras emparejadas. ....	62
Tabla X. Datos radiológicos del bulto RBMA emitidos por la CN y determinados por el CIEMAT. ....	67
Tabla XI. Combinaciones de variables para la realización de los diferentes ensayos sobre el bidón homogéneo RBMA procedente de la CN. ....	69
Tabla XII. Tiempo muerto obtenido para el colimador de $90^\circ$ a diferentes distancias y con dos blindajes de Pb distintos. ....	69
Tabla XIII. Tiempo muerto obtenido para el colimador de $30^\circ$ a diferentes distancias y con dos blindajes de Pb distintos. ....	70
Tabla XIV. Caracterización de bulto homogéneo RBMA, mediante metodología homogénea con rotación (ISOCS-HOMOG) y en estático para ángulos de $0^\circ$ , $60^\circ$ , $90^\circ$ , $120^\circ$ , $180^\circ$ , $240^\circ$ , $270^\circ$ y $300^\circ$ , con colimador de $30^\circ$ y distancia bidón-detector de 2 m. ....	71
Tabla XV. Caracterización de bulto homogéneo RBMA, mediante metodología homogénea con rotación (ISOCS-HOMOG) y en estático para ángulos de $0^\circ$ , $60^\circ$ , $90^\circ$ , $120^\circ$ , $180^\circ$ , $240^\circ$ , $270^\circ$ y $300^\circ$ , con colimador de $30^\circ$ y distancia bidón-detector de 3 m. ....	71
Tabla XVI. Caracterización de bidón homogéneo RBMA, mediante metodología homogénea con rotación (ISOCS-HOMOG) y en estático para ángulos de $0^\circ$ , $60^\circ$ , $90^\circ$ , $120^\circ$ , $180^\circ$ , $240^\circ$ , $270^\circ$ y $300^\circ$ , con colimador de $30^\circ$ y distancia bidón-detector de 4 m. ....	72
Tabla XVII. Composiciones de los distintos tipos de cemento Portland.....	77
Tabla XVIII. Relación de ángulos-posiciones analizados para las matrices de aire, arlita y arena. ....	87
Tabla XIX. Actividades de los bidones con la fuente de $^{152}\text{Eu}$ con medida en estático. ....	88

Tabla XX. Actividades de la fuente de $^{152}\text{Eu}$ obtenidas con EPP de cada posición y con el bidón rotando. ....	90
Tabla XXI. Actividades obtenidas con la MEPF. ....	93
Tabla XXII. Actividades obtenidas con la EMPY para $Y=17$ cm. ....	93
Tabla XXIII. Combinación de posibilidades en la generación de bultos de materiales residuales. ....	98
Tabla XXIV. Densidades de los bidones utilizados en los ensayos. ....	99
Tabla XXV. Determinación de la actividad del bidón CIP-1321 con materiales desclasificables mediante distintas metodologías de caracterización con ISOCS ( $\rho = 0,88 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ). ....	100
Tabla XXVI. Actividad de $^{137}\text{Cs}$ contenida en los bidones con materiales desclasificables y determinada con las eficiencias: MEPF, EMPY y HOMOG. ....	100
Tabla XXVII. Actividad de $^{152}\text{Eu}$ contenida en el bidón YESO ( $\rho = 1,2 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) y determinada con las eficiencias de la metodología heterogénea, homogénea y la correspondiente a certificado. ....	101
Tabla XXVIII. Combinación de posibilidades en la generación de bultos de materiales residuales con la metodología a aplicar. ....	102
Tabla XXIX. Actividad del bidón homogéneo ( $\rho = 1,91 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) determinada mediante rotación uniforme con ISOCS-HOMOG y en estático para cuatro posiciones distintas giradas $90^\circ$ . ....	103
Tabla XXX. Diferentes técnicas de caracterización del bulto RBMA homogéneo ( $\rho = 1,54 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ). ....	104
Tabla XXXI. Caracterización de bidón heterogéneo mediante metodología homogénea en estático para ángulos de $0^\circ$ , $60^\circ$ , $90^\circ$ , $120^\circ$ , $180^\circ$ , $240^\circ$ , $270^\circ$ y $300^\circ$ . ....	106
Tabla XXXII. Caracterización de bidón heterogéneo con residuos tecnológicos mediante distintas metodologías. ....	107
Tabla XXXIII. Radionucleidos e índices de actividad determinados en las muestras sólidas provenientes de la caracterización de la Parcela J. ....	111
Tabla XXXIV. Resultados del índice de actividad $\beta$ total (BT). ....	113
Tabla XXXV. Concentración de actividad de $^{137}\text{Cs}$ mediante espectrometría $\gamma$ de laboratorio. ....	114
Tabla XXXVI. Resultados de la concentración de $^{90}\text{Sr}$ mediante centelleo líquido. ....	115
Tabla XXXVII. Resultados de la concentración de $^{90}\text{Sr}$ mediante la metodología propuesta en este trabajo. ....	116
Tabla XXXVIII. Resultados del índice de actividad $\beta$ total determinados por el LCRR y el LPM. ....	120
Tabla XXXIX. Concentración de actividad de $^{137}\text{Cs}$ determinada por espectrometría $\gamma$ con ISOCS del bidón acondicionado para distintos tiempos de medida. ....	121
Tabla XL. Actividad de $^{137}\text{Cs}$ determinada mediante espectrometría $\gamma$ de laboratorio y con ISOCS. ....	122
Tabla XLI. Actividad de $^{90}\text{Sr}$ contenida en el bidón, estimada con el índice $\beta$ total e ISOCS, con el índice $\beta$ total y $E_\gamma$ de laboratorio y la determinada mediante centelleo líquido. ....	123
Tabla XLII. Tasas medioambientales y costes asociados a la gestión de RR y de RCD (año 2015). ....	125

Tabla XLIII. Relación de costes económicos en base a la separación de materiales residuales realizada.....	126
--	-----

## 8.2 Índice de figuras

Figura 1. Caracterización de materiales residuales procedentes de la Parcela J, mediante espectrometría $\gamma$ con ISOCS y recuento mediante contador proporcional de bajo fondo radiactivo, marca Protean, modelo MPC-9604. ....	2
Figura 2. Poder de penetración de la radiación $\alpha$ , $\beta$ y $\gamma$ . ....	9
Figura 3. Regiones de operación de un detector de ionización gaseosa. ....	9
Figura 4. Autoabsorción de la radiación en la fuente radiactiva.....	11
Figura 5. Bandas de valencia y bandas de conducción. ....	11
Figura 6. Esquema de sistema de espectrometría $\gamma$ . ....	12
Figura 7. Esquema global para la caracterización de los materiales residuales generados en PIMIC-Rehabilitación. ....	15
Figura 8. Métodos de exploración segmentada. ....	21
Figura 9. Sistema de exploración integral. ....	23
Figura 10. Plancheta ranurada. ....	28
Figura 11. Contador Proporcional MPC-9604. ....	31
Figura 12. Esquema del sistema de flujo del gas P-10 en el MPC-9604. ....	31
Figura 13. Detector portátil de Ge con colimador de Pb de 50 mm de espesor y 90° de apertura. ....	32
Figura 14. Espectro correspondiente a la barra de $^{152}\text{Eu}$ contenida en un bidón con matriz de arlita. .	37
Figura 15. Ejemplo de geometría que permite adoptar el programa <i>Geometry Composer</i> . ....	37
Figura 16. Bidón sobre plataforma de giro. ....	38
Figura 17. Sistema SGS ubicado en IR-17. ....	39
Figura 18. Esquema representativo para la caracterización de bultos con materiales residuales mediante espectrometría $\gamma$ . ....	48
Figura 19. Curvas características $\alpha$ de los cuatro detectores del contador proporcional MPC-9604.....	50
Figura 20. Curvas características $\beta$ de los cuatro detectores del contador proporcional MPC-9604.....	51
Figura 21. <i>Spillover</i> medido en la ventana $\alpha$ y $\beta$ para los cuatro detectores del contador proporcional MPC-9604. ....	54
Figura 22. Figuras de mérito para las ventanas $\alpha$ de los cuatro detectores del contador proporcional MPC-9604. ....	55
Figura 23. Figuras de mérito para las ventanas $\beta$ de los cuatro detectores del contador proporcional MPC-9604. ....	56
Figura 24. Curvas de autoabsorción $\alpha$ . ....	57
Figura 25. Esquema de selección de geometría: <i>Simple Cylinder</i> . ....	64
Figura 26. Pantalla de introducción de datos dimensionales y de materiales.....	64

Figura 27. Pantalla de selección del colimador.....	64
Figura 28. Curva de eficiencia. ....	64
Figura 29. Ángulo sólido generado por el colimador de 90 ° a una distancia de 42 cm.....	65
Figura 30. Ángulo sólido generado por el colimador de 90 ° a una distancia de 80 cm.....	65
Figura 31. Influencia de la distancia bidón-detector en todo el intervalo de energías. ....	65
Figura 32. Bidón sobre plataforma de giro enfrentado al detector. ....	68
Figura 33. Detector con colimador de 30 ° a 2 m del bidón.....	68
Figura 34. Detector con colimador de 90 ° a 2 m del bidón.....	68
Figura 35. Tiempo muerto en función de la distancia bulto-detector para los colimadores de 90 ° y 30 ° y los dos blindajes de Pb de 25 mm y 50 mm. ....	70
Figura 36. Actividad del <sup>60</sup> Co del bulto determinada en estático y con rotación del bulto, colimador de 30 ° y a diferentes distancias.....	73
Figura 37. Actividad del <sup>137</sup> Cs del bulto determinada en estático y con rotación del bulto, colimador de 30 ° y a diferentes distancias.....	73
Figura 38. Detectores con blindajes de Pb y pared de Pb interpuesta entre los dos detectores.....	74
Figura 39. Curva de eficiencia en función de la energía para los diferentes compuestos utilizados en el estudio de la influencia de la composición.....	76
Figura 40. Influencia de la composición en la eficiencia a bajas energías. ....	76
Figura 41. Variaciones en la composición de los cementos Portland y su influencia en la eficiencia....	78
Figura 42. Eficiencia en función de la energía para distintas densidades. ....	79
Figura 43. Eficiencia en función de la densidad para distintas energías.....	79
Figura 44. Eficiencia experimental (certificado) y determinada con ISOCS para bidón homogéneo en estático, en uno de los ángulos de medida (IRB-3). ....	81
Figura 45. Eficiencia experimental (certificado) y determinada con ISOCS para bidón homogéneo con rotación uniforme a 7 rpm. ....	81
Figura 46. Pantalla de selección de geometría: <i>Complex Pipe</i> .....	84
Figura 47. Pantalla de introducción de datos dimensionales y materiales. ....	84
Figura 48. Plantilla de selección del colimador.....	84
Figura 49. Representación esquemática de la disposición del bidón con respecto al detector. ....	85
Figura 50. Disposiciones radiales de los cinco tubos dentro del bidón para una disposición angular concreta.....	85
Figura 51. Conjunto de las cuatro disposiciones angulares (a, b, c y d) obtenidas mediante giros sucesivos de 90°.....	86
Figura 52. Trayectorias circulares originadas por la fuente en el movimiento de rotación del bidón. ..	89
Figura 53. Conjunto bulto-detector. ....	89
Figura 54. Esquema general para la determinación del factor de ponderación <i>F</i> .....	89
Figura 55. Actividades de la fuente de <sup>152</sup> Eu para el bidón con matriz de aire, obtenidas para cada posición radial utilizando las EPP de las distintas posiciones radiales. ....	91

Figura 56. Actividades de la fuente de $^{152}\text{Eu}$ para el bidón con matriz de arlita, obtenidas para cada posición radial utilizando las EPP de las distintas posiciones radiales. ....	91
Figura 57. Actividades de la fuente de $^{152}\text{Eu}$ para el bidón con matriz de arena, obtenidas para cada posición radial utilizando las EPP de las distintas posiciones radiales. ....	92
Figura 58. Comparación entre la eficiencia obtenida con certificado y las determinadas con ISOCS mediante las dos metodologías definidas (MEPF y EMPY), para el bidón rotando con matriz de aire y la fuente ubicada en la posición 3. ....	95
Figura 59. Comparación entre la eficiencia obtenida con certificado y las determinadas con ISOCS mediante las dos metodologías definidas (MEPF y EMPY), para el bidón rotando con matriz de arlita y la fuente ubicada en la posición 3. ....	95
Figura 60. Comparación entre la eficiencia obtenida con certificado y las determinadas con ISOCS mediante las dos metodologías definidas (MEPF y EMPY), para el bidón rotando con matriz de arena y la fuente ubicada en la posición 3. ....	96
Figura 61. Factores influyentes en la determinación de actividad por espectrometría $\gamma$ <i>in situ</i> con ISOCS aplicada a bidones homogéneos. ....	97
Figura 62. Metodologías idóneas para la caracterización mediante espectrometría $\gamma$ <i>in situ</i> con ISOCS aplicada a bidones heterogéneos. ....	102
Figura 63. Comparación de los resultados obtenidos para el $^{60}\text{Co}$ y $^{137}\text{Cs}$ del bidón RBMA con las diferentes metodologías. ....	104
Figura 64. Actividad del bidón heterogéneo de una IR determinado en distintos ángulos. ....	106
Figura 65. Técnicas y análisis utilizados en la caracterización de materiales desclasificables.....	110
Figura 66. Esquema del procedimiento para la estimación del $^{90}\text{Sr}$ .....	111
Figura 67. Relación de las concentraciones de $^{90}\text{Sr}$ obtenidas mediante centelleo líquido y mediante el índice de actividad $\beta$ total. ....	117
Figura 68. Distribución de los resultados experimentales obtenidos para el índice de actividad $\beta$ total (BT).....	118
Figura 69. Gráficos P-P y Q-Q para los resultados experimentales obtenidos para BT considerando su distribución normal. ....	119
Figura 70. Distribución de los resultados estimados para el $^{90}\text{Sr}$ mediante la expresión 27.....	119
Figura 71. Gráfico P-P para el $^{90}\text{Sr}$ obtenido a partir del índice de actividad $\beta$ total determinado experimentalmente con el contador proporcional de flujo continuo MPC-9604. ....	119
Figura 72. Relación lineal para la validación de los resultados obtenidos para el índice de actividad $\beta$ total entre los resultados determinados por el LPM y los determinados por el LCRR. ....	121
Figura 73. Determinación del $^{90}\text{Sr}$ mediante diferentes técnicas. ....	122
Figura 74. Materiales residuales generados por el PIMIC en el área de La "Lenteja", CIEMAT. ....	126
Figura 75. Clasificación de los materiales residuales generados por el PIMIC en el área de "La Lenteja" (Figura 74). ....	126





## 9 Listado de acrónimos

---

ADC:	Conversor Analógico Digital.
AMC:	Analizador Multicanal
AMD:	Actividad Mínima Detectable.
BB:	Big-bag.
CIEMAT:	Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas.
CMA:	Concentración Media de Actividad.
CMB:	Contenedor de Materiales de Baja Actividad.
CMD:	Contenedor de Materiales Desclasificables.
CMT:	Contenedor Metálico de Transporte.
CN:	Central Nuclear.
CSN:	Consejo de Seguridad Nuclear.
EMPY:	Eficiencia Media Ponderada Intermedia.
ENRESA:	Empresa Nacional de Residuos Radiactivos, S.A.
EPP:	Eficiencia Promedio Ponderada.
FE:	Factor de Escala.
HOMOG:	Homogéneo.
HPGe:	Germanio de Alta Pureza.
HVPS:	Fuente de Alta Tensión.
IGS:	Integral Gamma Scanning.
IR:	Instalación Radiactiva.
ISOCS:	In Situ Object Counting System.
LCRR:	Laboratorio de Caracterización de Residuos Radiactivos.
LMPR:	Laboratorio de Medidas de Protección Radiológica.
LMRI:	Laboratorio de Metrología de Radiaciones Ionizantes.
LPM:	Laboratorio de Preparación de Muestras.
LVCR:	Laboratorio de Verificación de la Calidad de los Residuos (El Cabril, ENRESA).
MEPF:	Multieficiencia Ponderada Final.
NA:	Nivel de Acción.

ND1:	Nivel de Desclasificación Incondicional.
ND2:	Nivel de Desclasificación Condicional Genérico.
ND3:	Nivel de Desclasificación Condicional Específico.
PCMD:	Plan de Control de Materiales Desclasificables.
PCMD-D:	Plan de Control de Materiales Desclasificables del Proyecto PIMIC-Desmantelamiento.
PCMD-R:	Plan de Control de Materiales Desclasificables del Proyecto PIMIC-Rehabilitación.
PGRR:	Plan General de Residuos Radiactivos.
PIMIC:	Plan Integral de Mejora de las Instalaciones del CIEMAT.
PIMIC-D:	Plan Integral de Mejora de las Instalaciones del CIEMAT-Desmantelamiento.
PIMIC-R:	Plan Integral de Mejora de las Instalaciones del CIEMAT-Rehabilitación.
PTR:	Permiso de Trabajo con Radiaciones.
RAA:	Residuos Radiactivos de Alta Actividad.
RBBA:	Residuos Radiactivos de Muy Baja Actividad.
RBMA:	Residuos Radiactivos de Baja y Media Actividad.
RDM:	Radionucleido de Difícil Medida.
RFM:	Radionucleido de Fácil Medida.
RINR:	Reglamento de Instalaciones Nucleares y Radiactivas.
SGS:	Exploración Gamma Segmentada.
TGS:	Exploración Gamma Tomográfica.
UGR:	Unidad de Gestión de Residuos

